

Title	ニ酸化ウランペレットのリロケーションと核燃料挙動 に関する研究
Author(s)	小熊, 正臣
Citation	大阪大学, 1984, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/798
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

# 二酸化ウランペレットのリロケーション

## と核燃料挙動に関する研究

## 昭和59年

小熊正臣

二酸化ウランペレットのリロケーション

と核燃料挙動に関する研究

### 昭和59年

### 小熊正臣

### 目

第1章	序 論	1
1.	背景および動機	1
2.	研究の目的および構成	7
3.	参考文献	8
第2章	二酸化ウランペレットの熱衝撃破壊	14
1.	緒 言	14
2.	理 論	14
3.	実 験	22
4.	結果および検討	29
5.	結 言	38
6.	参考文献	39
第3章	二酸化ウランペレットの破壊強度	4 1
1.	緒言	4 1
2.	実 験	4 1
3.	結果および検討	44
4.	結 言	56
5.	参考文献	57
第4章	出力上昇過程におけるペレットの割れとリロケーション挙動	58
1.	緒言	58
2.	燃料棒照射実験	59
3.	ペレットの変形解析	63
4.	結果および検討	71
5.	結 言	95
6.	参考文献	96

.

第5章	ペレットー	被覆管相互作用のもとでの割れたペレットの挙動	99
1.	緒言	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	99
2.	炉外PCI	模擬実験	101
3.	燃料棒の F	°CⅠ変形解析	109
4.	結果および	*検討	111
5.	結 言	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	128
6.	参考文献	•••••	129
第6章	ペレットー	被覆管相互作用の開始条件	1 3 1
1.	緒言	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	1 3 1
2.	ハード P C	Ⅰ開始条件の解析的検討	131
3.	ハード P C	Ⅰ開始条件の実験的検討	1 3 8
4.	結果および	後討	1 4 2
5.	結 言		151
6.	参考文献		152
第7章	結 論		154
発表論さ	と一覧	•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	158
謝 舌	辛		160

#### 第1章 序 論

#### **1.** 背景および動機

1.1 前 言

世界最初の商用原子炉である Dresden-1 (BWR)とYankee Rowe (PWR) が運転を開始して以来,約24年の歳月が経過した。この間における軽水炉燃料の 性能向上と信頼性向上は著しいものがある。信頼性を例に取るならば,燃料棒の破 (1)~(3) 損率は現在BWR燃料で10<sup>-5</sup>~10<sup>-6</sup>,PWR燃料で10<sup>-4</sup>~10<sup>-5</sup>にまで減少し, 工業製品として信頼性の高い成熟製品の地位を着実に築きつつある。しかし, 現在に至る軽水炉燃料の仕様改良の経緯を見ると,燃料の性能や信頼性は順調に向上し てきたわけでなく,破損を含む予想外の事例の出現と,その原因究明・対策の反復 の歴史であったことを示している。表1.1にBWR燃料を例にとって,燃料開発の経 緯を主な破損原因と関連づけて示す。このような開発の流れの中で重要な点は,現 在の高性能,高信頼性燃料の実現には,新たに経験した事例からの情報と関連研究 の成果を総括的にかつ適確に評価し,それを燃料設計仕様面に反映させた解析評価 技術たとえば燃料挙動予測コードの進歩が大きく貢献した点である。このよう な解析評価技術の開発を含めた燃料研究開発のバターンは,より高い性能と信頼性 を追求する限り,今後とも継続されるものと思われる。

項目 西暦年	1960 1965	1970	1975	1980	1985	1990
燃料型式	6×6	7×7	7×7 改良 8×8		8×8改良	
開発 ステップ	初期の性能向	Ŀ	信頼性向上	利	川率向上と高	性能化
主な改良 主な 破場原田	<ol> <li>Zry 被覆管の採用, 応力除去</li> <li>②給水加熱器材質変更</li> <li>③気水分離器構造変更</li> <li>④燃料部材品質管括</li> <li>⑤燃料棒長尺化</li> <li>⑥7×7型燃料(t)</li> <li>⑦ディシュペレッ</li> </ol>	5.焼鈍処理 ( <sup>9</sup> <sup>9</sup> 里強化 出力上昇) ット採用	<ul> <li>1燃料棒内水分管理強</li> <li>2ゲッター採用</li> <li>1 短尺,チャンファへ</li> <li>2 Zry完全焼鈍が</li> <li>3 線出力密度</li> <li>4 ならし運転</li> <li>(PCI)</li> </ul>	と レットの採用 処理 威少(8×8型 気法の採用 OMR)	<ol> <li>PCIOMRの修正</li> <li>②He加圧</li> <li>③上下2領域燃</li> <li>④バリア型(</li> <li>⑤運転サイ</li> <li>⑥高燃焼</li> </ol>	<sup></sup>
100 預 原 凸	 (○ SUS 被覆管の S ○ クラッド堆積 ○ フレッティング ○ 製造上の欠陥	CC L <sub>o 局部水</sub> 腐食	k素化 <sup>L</sup> o PCI	ーーーーー - PCI/S (燃料砚 (潜在的	━━━━━━━━ CC 対損ほとんどなし, り破損原因として存在	但し, する。)

- 1 -

表**1.1** BWR燃料開発の推移

⑧ 燃料改良と直接関係なし

以下,表1.1 に示した主な破損原因とその対策の推移を簡単にふり返るとともに, その延長線上としての今日的問題,すなわち軽水炉燃料に課せられている現在の研 究開発課題を述べることによって本研究の動機および意義を明らかにしてゆきたい。

#### 1.2 主な燃料破損原因と仕様改良の経緯

商用運転開始から約10年間は,出力密度の増加など燃料の性能向上が計られる 一方で、品質、材質、構造の不良に起因する未成熟製品特有の破損が発生したが、 (4)(5) こ。 その後,7×7型燃料設計仕様が定 次々に適当な措置が施され順次解決した。 着してきた1960年後半から1970年始めにかけ,比較的低い燃焼度の燃料被 覆管にジルコニウム水素化合物(乙1日18)が局部的に形成し,破損に至る局部水素 化破損が多発した。 水素化物の成因は燃料棒製造工程中にUО2ペレット中に吸収 される水分であると判断され、直ちに製造工程にペレットおよび燃料棒の高真空脱 ガス処理工程が組込まれた。1972年後半からは、これらに加えて水分ゲッター を入れた燃料棒が採用され、局部水素化破損の問題は完全に解決した。1970年 (9) 始めに新たな破損が発見された。この破損は中高燃焼度の高出力,高出力変動を経 験した燃料棒に多くみられること,破損部が軸方向ではペレット端部に位置し, しかも燃料棒断面ではペレットの半径方向の割れと良く対応していたことから,熱 変形したペレットと被覆管との機械的相互作用(以下,PCI:Pellet-Cladding Interaction)による破損であると判定された。軽水炉燃料の一般的使用条件で は、UO2ペレットは中心部が1000℃以上の高温になり、半径方向には1000 ~2000℃/emの温度勾配が生じる。このためペレットは,図11に示すように 割れを伴い、割れ片が外側にせり出すように鼓状に変形する。この割れ片のせり出 し現象,すなわち割れたペレットのみかけ直径の増加をリロケーション(reloca-(1)(12 tion)と呼んでいる。 リロケーションはペレット端部で最大となるため,その 部分でPCIが発生し被覆管には図1.2に示すようなリッジ(ridge)と呼ばれる 隆起が形成する。そして被覆管がペレット端部で内側から支えられた状態で冷却水 圧力を受けると、外圧クリープによりリッジ変形は更に加速される。 これに加え て、リッジ部の横断面では割れたペレットがその割れ目を更に大きくするように変 形するため,被覆管内面の割れに近接する位置で局所的な応力,ひずみの集中が起こ

- 2 -

(10)(16)(17)

る。 このような被覆管リッジ部の力学的検討から, PCI破損は被覆管の照射脆 化という材料特性の変化と, リッジ部における局所的な応力, ひずみの集中が直接 (13~20) 原因であると判断された。 そこで, PCI対策として新しい原子炉運転方式の採 用と,燃料設計面での改良が行われた。



図1.1 UO2 ベレットの典型的な熱変形 (割れとそり返り変形)



図 1.2 ペレットー被覆管相互作用 (PCI)による被覆管のリッジ変形 新しい原子炉運転方式は, PCIOMR (Preconditioning Interim Operation Managemement Recommendation)と呼ばれ, その基本的ねらいは PCIを起 した後の出力上昇速度を十分遅くすることにより, 徐々にペレットをクリープさせ 20~23 被覆管に過大な応力, ひずみを与えないようにすることにある。 PCIOMRの採 用により, 最高出力到達時の燃料棒のリッジ変形量は従来の約½に減少した。

燃料設計面としては、ペレットのそり返り変形を少なくするため、ペレットを短 尺化するとともに最大のリロケーションを生じる端部に面取り(チャンファ)を施 すなどの改良が行われた。また、被覆管の延性特性を改善するため、従来の応力除 去焼鈍処理した被覆管に代えて再結晶焼鈍処理した被覆管が採用されることになっ (1) た。更に炉心出力密度を一定に保持したまま,燃料集合体が7×7型配列から8× 8型配列に変更され,燃料棒の最高出力は18.5 kW/ft(610W/cm)から (1) 1 3.4 kW/ft(440W/cm)に低減した。このような一連のペレット改良と燃 料棒の出力低減の結果,燃料棒のPCI変形は大幅に減少した。その後間もなく PCI 破損は単なる機械的要因のみで起こるのではなく,応力,ひずみの集中個所 に、ペレットから放出されたヨウ素などの腐食性核分裂生成ガスが作用して起るジ ルカロイ被覆管の応力腐食割れ(SCC:Stress Corrosion Cracking)であ ることが判明し、以来この破損はPCI/SCC破損、あるいはジルカロイのSCС 協 破損と呼ばれるようになった。ジルカロイのSCCに関する研究は,現在も精力的 に行われており、発生機構もかなり明らかになってきた。SCC発生しきい値につ 2620 28~30 いても,応力レベル,ひずみ速度,ヨウ素濃度 など個々の因子について定量化 されつつある。しかし,それらを系統的にまとめた定量的モデルはまだ完成されて いない。PCI/SCCはUO2ペレットージルカロイ被覆管タイプの燃料にとって 本質的な破損要因を有しており、その意味では依然として今日的問題として残され ている。

1.3 現在の研究課題

PCIOMRの導入(1973年)以降の燃料運転実績は,PCIOMRがPCI/ SCC破損防止対策として極めて有効であることを示した。しかし,PCIOMRは 原子炉の利用率の低下を招くばかりでなく,運転性能を著しく損うという問題を生 じた。一方,最近の原子炉の大容量化と原子力発電量の相対的増加は,軽水炉に対

し従来の基底負荷の代わりに負荷追従型発電炉としての役割りを要求するようにな 更に、軽水炉の経済性向上の観点から、燃料の燃焼度伸長、すなわち ってきた。 84 高燃焼度化が強い要求になりつつある。したがって,PCIOMRを必要としない機 動性の優れた燃料,更にこれらの性能に加え高燃焼度にも耐える燃料を開発するこ とが、現在軽水炉燃料に課せられた最も大きな技術的課題となっている。その課題 を解決する第一ステップとして,PCIOMRの撤廃を目標とした研究開発が, He加圧-バリア型被覆管から構成される改良燃料を中心に進められている。 二ステップである高燃焼度型燃料の開発に関しては,耐腐食性被覆管の開発および 低FPガス放出や高クリープ特性など特性改良をねらった改良UO2 ペレットの開 50~60 発が行われる一方, 高燃焼度燃料に特有な問題,例えばFPの蓄積によるUO2 (1)(42) ペレットの機械的,熱的特性の変化や熱力学的影響, (U,Gd)O2燃料の特性などに 43/44 ついて一連の研究が実施されつつある。 このような改良燃料,高燃焼度型燃料に代表さ れる燃料構造面の開発の他に、これらを支える基盤技術としての燃料挙動解析技術 の開発も重要課題として並行に進められている。PCIOMRの撤廃が目標の改良燃 料,あるいは長期間過酷な運転に耐えなければならない高燃焼度型燃料には,不可 避的に高出力変動というPCI/SCCの点で厳しい条件が付加される。したがっ て、これらの燃料棒の健全性評価には、従来にも増して精度の高いPCI挙動解析 が必要となってくる。現在高出力変動下での PCI 挙動を解析 する燃料挙動予 (15~(1) 測コードが数多く開発されつつある。 これらのコードは一般に有限要素法などの 構造解析手法を取入れており、ペレットと被覆管接触下の力学的問題の精密な取扱 いが可能である。しかしながら、PCIを解析する上で最も重要かつ基本的要因で あるUО2ペレットの割れ挙動やリロケーション挙動なとが未だに正確に把握され ていないため,この部分については,弾塑性モデルやギャップコンダクタンスモデル など他のモデルに比べて極めて粗い取扱いとなっている。例えばリロケーション量 について,単に経験的な定数を与えるという方式がまだ多くのコードで採用されて (43~50)いる。 コード全体の精度はそれを構成する個々の挙動モデルの最も低い精度で決 まってしまうため,UO2ペレットの変形 挙動の解明とそのモデル化が強く要望 されているのが現状である。

- 6 -

#### 2. 研究の目的および構成

本研究は,燃料棒の力学的ふるまいを評価する上で必要なUO2 ペレットの変形挙動 を解明するために行ったものである。以下,燃料棒の出力上昇時における典型的な伸び 挙動とペレットの変形(推定)を対応させた図1.3を用いて本研究の具体的目的を述べ る。



図1.3 出力上昇中の燃料棒伸び挙動

図1.3に示すように、UO2 ペレットは出力上昇とともに次のような変形を生ずるものと考えられる。最初ペレットは中実円柱体の熱膨張(領域A)の後B点で割れる。割れと同時にリロケーションが生じ、局所的な弱いPCI(以下,ソフトPCIと言う)を起こしつつ変形する(領域C)。D点で割れ片群の自由度が消失し強いPCI(以下ハードPCIと言う)が発生し、その後は割れ片の集合体として変形する(領域E)。

本研究の目的は,図1.3に示したAからEに至る一連のペレット変形挙動を解明 すると同時に,得られた知見を燃料挙動解析技術に反映するため,それらの挙動をモデ ル化することにある。

本論文は7章より構成される。本章の序論に続き,次の第2章,第3章ではUO2ペ レットの破壊特性を燃料棒の使用面と焼結体としての物性面から明らかにする。 BWR は起動時に制御棒引抜きによって出力上昇するが, UО2 ペレットはこの過程で熱衝撃 的に割れると考えられる。したがって,第2章でUО2ペレットの熱衝撃特性を理論と 実験から明らかにすることを試みる。このようなUO2 ペレットの熱衝撃損傷や熱応力 破壊を評価する上で,破壊強度は最も基本的な物性値である。セラミックスの破壊強度 は一般に気孔率や結晶粒径,それに気孔径などその微細組織に強く影響されることが 知られている。そこで第3章でUО2ペレットの破壊強度に及ぼす微細組織の影響につ いて述べる。第4章から第6章まではUO2ペレットの変形挙動解明とモデル化について 記述する。まず第4章でソフトPCI領域でのUO2 ペレットの変形挙動,すなわち割 れとリロケーション、リロケーションによるギャップの変化について解析と燃料棒照射 実験の両面から研究を進め、出力上昇開始からハードPCIに至るリロケーションによ るギャップの変化を記述するギャップ閉塞モデルを提案する。第5章では、ハードPCI 領域のUO2 ペレットの変形挙動を, 炉外PCI模擬実験と燃料棒のPCI変形解析か ら明らかにする。そして、ハードPCI領域の燃料棒変形挙動を記述する「割れたペレ ット」の実効弾性モデルについて述べる。第6章ではハードPCI開始点が,ペレット の変形との関係においてどのような条件で与えられるかを理論的および実験的方法によ り調べた結果を述べる。最後に第7章で,第2章から第6章までの研究成果を総括する。

**3.** 参考文献

- (1) F.W. Kramer: PWR fuel performance-The Westinghouse view, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Toronto, Canada, (1975)
- (2) T.B. Burley, J. Desterfano, J.B. Melehan: PWR fuel;Experience and current development programs, Trans. Am.

- 8 -

Nucl. Soc., 18, 249 (1974)

- (3) H.E. Williamson, R.A. Proebstle: Results with BWR fuel improvements, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)
- (4) J.A.L. Robertson: Nuclear fuel failures, their casues and remedies, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)
- (5) H.E.Williamson, D.C. Ditmore: Current BWR fuel design and experience, Reactor Technology, 14 (1), 68 (1971)
- (6) L. Hoseph: Performance of fuel elements in nuclear power plants, Nucleonics, 21(3), 51(1966)
- (7) D.H. Locke: Review of experience with water reactor fuels 1968-1973, Advanced Course on In-reactor Behaviour of Water Reactor fuels and its Influence on Design, Manufacture and Operation, Netherland-Norwegian Reactor School (1974)
- (8) R.A. Proebstle, J.H. Davies, T.C. Rowland, D.R. Rutkin, J.S. Armijo,: The mechanism of defection of zircaloy clad fuel rods by internal hydriding, paper presented at the ANS/CNA Topical Meeting on Commercial Nuclear Fuel-Current Technology, Tronto, Canada, (1975)
- (9) H.H. Klepfer, R.B. Richards, T. Trocki: Fuel Performance in the BWR, Proc. American Power Conference, 34, 169 (1972)
- (1) J.H. Gittus: Theoretical analysis of some forces, stresses and strains produced in nuclear fuel element cladding by thermal expansion of cracked fuel deformation, TGR Report 1547(S), (1967)

- 9 -

- (1) 原子力安全研究協会:軽水炉燃料のふるまい (昭和56年)
- (12 C.E. Beyer, C.R. Hann, D.D. Lanning, F.E. Panisko and L.J. Perchen; BNWL-1898 (1975)
- (3) M. Ichikawa, K. Yanagisawa and E. Kolstad: Studies on Radial and Axial Deformation of Fuel Rods by Inpile Measurements; International Atomic Energy Agnecy Specialists' Meeting on Pellet-Cladding, (1983)
- (4) 久保,小熊,原:ジルカロイー2被覆管の外圧クリープ,日本原子力学会誌,23,
   7 (1980)
- 05 H. Maki, T. Hara : J.Nucl. Sci, Technol., 12(1) 43(1975)
- (16) 細川,他:日本原子力学会 昭和50年秋の分科会G12 (1975)
- (1) 牧:軽水炉燃料の変形挙動;日本原子力学会誌 18[8],(1976)
- (18) E. Rolstad, K.D. Knudsen: Studies of fuel/clad mechanical interaction and the resulting interaction failure mechanism, paper A/CONF. 49/P/295, presented at the 4th International Conference on the Peaseful Use of Atomic Energy, Geneva (1971)
- (9) S. Djrle, G. Lysell, H. Mogard: Some irradiation studies of fuel/clad interaction and clad cracking, paper A/CONF. 49/P/315, ibid.
- 20 H. Mogard, S. Aas, S. Junkrans: Power increases and fuel difection, paper A/CONF.49/P/314, ibid.
- Q1) GE:原子燃料の調整法,特許ん50-143999 (1975)
- 22 R.A. Proebstle, et al: Current Trends in BWR Fuel Performance, ANS Topical Meeting on Water Reactor Feul Performance, St. Chrles Illinois May 9-11, (1977)
- 23 L.H. Boman, et al: Fuel Operating Experience in Westinghouse PWRs, ANS Topical Meeting on Water Reactor Fuel Performance, St. Charles Illinois, May 9-11, (1977)

-10-

- 24 藤江,小熊,新保,牧,河原:沸騰水型原子炉(BWR)燃料に対する信頼性向上の 研究現状;日立評論,60[2],(1978)
- Ø J.H. Davies, et al: Power Ramp Tests of Potential PCI Remedies, ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, April 29 to May 3, Portland Oregon, (1979)
- 20 A. Garlick: Fracture of Zircaloy Cladding Under Simulated Power Ramp Conditions, J. Nucl. Mater., 49, 209 (1973/74)
- Ø K. Videm and L. Lunde: Fuel Element Failures Caused by Iodine Stress Corrosion, Proc. ENS/ANS European Nucl. Conf. Energy Maturity, Paris, P.76 (1975)
- <sup>(2)</sup> K. Une : Effects of Strain Rate, Stress Condition and Environment on Iodine Embrittlement of Zircaloy-2, ANS Topical Meeting on Light Water Reactor Fuel Performance, April 29 to May 3, Portland Oregon, (1979)
- <sup>(29)</sup> K. Videm and L. Lunde: Cracking of Cladding Tubes Caused by Power Ramping and by Laboratory Stress Corrosion Experiments, J. Nucl. Mater., 87,259 (1979)
- 80 R.L. Jones, et al: Threshold Conditions for Iodine-induced Stress Corrosion Cracking of Unirradiated Zircaloy-4 Tubing under Internal Pressurization, J. Nucl. Mater., 82, 26 (1979)
  80 C.C. Busby, et al: Halogen Stress Corrosion Cracking of Zircaloy-4 Tubing, J. Nucl. Mater., 55, 64 (1975)
- 62 日本原子力情報センタ:我国における高性能燃料開発と今後の原子力発電所の運転のあり方ー長期連続運転及び負荷追従運転を中心としてー(昭和58年)
- 53 近藤:高性能 P W R 燃料開発の現状,日本原子力学会 昭和58年年会 (1983)
- 64 日本原子力情報センタ:ウラン資源,濃縮,燃料開発及び経済性論議を中心とした 核燃料サイクル主要課題の展望;(昭和58年)
- (8) S. Junkans, et al : ASEA-ATOM Results on PCI Experiments on Fuel Rods. A Review, KTG/ENS/JRC Meeting on Ramping

-11-

and Load Following Behavior of Reactor Fuel, Nov. 30 to Dec. 1, Petten The Netherlands, (1978)

- <sup>60</sup> T.C. Rowland, J.H. Davies, J.R. Thompson and H.S. Rosenbaum: Statiatical Analysis of Power Ramp Test Data, International Atomic Energy Agency Specialists' Meeting on Pellet-Cladding Interaction in Water Reactor Fuel,(1983)
- 67 小熊:金属酸化物を微量添加したUO2ペレットの結晶組織;日本原子力学会 昭和56年分科会 (昭和56年)
- ※ 平山,小熊:金属酸化物を微量添加したUO2 ペレットのクリープ特性;日本原子
   力学会 昭和57年年会 (昭和57年)
- (39) 岩崎,小熊:金属酸化物を微量添加したUO2 ペレットの融点;日本原子力学会 昭和57年分科会 (昭和57年)
- 40 P.T. Sawbridge, G.L. Reynolds and B. Burton: The Creep of
   UO<sub>2</sub> Fuel Doped with NO<sub>2</sub>O; Journal of Nuclear Materials
   97 (1981)
- M. Oguma : Oxygen Potentials of UO<sub>2</sub> Fuel Simu lating High Burnup; J. Nucl. Sci. Technol., 20 (10), (1983)
- 42 K. Une, and M. Oguma : Oxygen Potentials of (U, Nd)  $O_{2\pm x}$ Sold Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500°C; J. Nucl. Mater, 188 (2 & 3), (1983)
- (4) K. Une, and M. Oguma : Thermodynamic properties of Nonstoichiometric Urania-Gadolinia Solid Solutions in the Temperature Range 700 - 1100°C, J. Nucl. Mater., 110, (2&3) (1982)
- #4 K. Une, and M. Oguma : Oxygen Potentials of (U, Gd)  $O_{2\pm x}$ Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500°C, J. Nucl. Mater., 115, (1), (1983)
- (5) T. Okubo et al., : Vertication of the FEMAXI-III Code; IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element

-12 -

Performance Computer Modeling, Preston, UK (1982)

- 46 J. Vliet and Hope, N. : Oxide Behavior Modelling Progress in COMETHE, idid.
- 47 E. Rolstad, and S.E. Wennemo : Status of POSHO-THERMAL Fuel Performance Model. ibid
- 48 M. P. Bohm. NUREG-1028 (1977)
- 49 Entropy Limited : EPRI NP-229,1 (1982)
- 50 K. Ito et al. : and Mechanics, 2, p109(pass)

#### 第2章 二酸化ウランペレットの熱衝撃破壊

#### 1. 緒 言

燃料棒の照射後試験や挙動解析によって, UО2 ペレットは使用中に熱応力により破 (1)(2)UO2ペレットの破壊はリロケーションを引起こし, 壊することが知られている。 PCIやジルカロイ被覆管のSCCの原因となるばかりでなく、FPガス放出の増加、 ひいては燃料温度を増加させるなど燃料棒の機械的,熱的性能に大きな影響を与える重  $(4) \sim (6)$ 。 BWRでは,起動時に全出力レベルの約60%(約260 要な燃料挙動の一つである。 W/cm)まで制御棒の引抜きによって出力上昇する。この際,燃料棒の出力上昇 速度は約1×10<sup>5</sup> W/cm/hという急激なものとなる。一方,出力上昇時にペレット に発生する熱応力は出力レベルが約20%に達するとU0₂の破壊強度を越えてしまうか ら, UO2 ペレットは最初の出力上昇時に熱衝撃的に破壊すると考えられる。したがっ て,このような熱衝撃条件下でのUО2ペレットの損傷挙動を把握することが燃料性能 を評価する上で重要となってくる。しかし、これに関しては現在までのところ制御棒に (7)~(9) 用いられる B4 C ペレットの 熱衝撃に関する研究 および 過渡時の燃料棒の 熱衝撃解析 など少数の関連研究例がみられるものの, UO2 ペレットの熱衝撃挙動を直接対象とし た研究例はほとんどみられない。

本章の研究は、UO2ペレットの出力上昇時における熱衝撃損傷と微細組織との関係、特 に気孔率との関係を明らかにするため行ったものである。そして、UO2ペレットの熱 衝撃損傷挙動を理論的に検討し、熱衝撃損傷を気孔率および気孔径や結晶粒径などの微 細組織パラメータの関数として表わす理論式を導出した。また、気孔率の異なるUO2 ペレットを試料とし炉外実験を行い、上記理論式による計算値と実験値との比較を試み た。

#### 2. 理 論

UO2 ペレットは、気孔や結晶粒界などの潜在的欠陥(以下,これを潜在クラック という)を含む物質である。このような物質が熱衝撃を受けたときの熱衝撃損傷につい て先ず理論的検討を行った。

-14-

2.1 熱衝撃を受けた物体の自由エネルギー

いま半径  $\ell$ の球状潜在クラックを単位体積あたりN個含む物体を温度差dTで熱 衝撃的に冷却または加熱する場合を考える。この物体の単位体積あたりの全自由エ ネルギーWは、熱応力  $\sigma$ によって蓄積された弾性ひずみエネルギー $W_p$ と破壊表面 エネルギー $W_g$ の和として与えられる。

$$W = W_p + W_g \qquad \dots \qquad (2-1)$$

上式の破壊表面エネルギー $W_g$  および弾性ひずみエネルギー $W_p$  はそれぞれ次のように表わされる。

$$W_{g} = 2 \pi G N \ell^{2} \qquad (2-2)$$

ここで,G:単位表面を形成するに要するエネルギー

β:クラックを含む物体の実効圧縮係数

である。

平面ひずみ条件ではEをクラックを含む物体のヤング率とすれば、 $\beta = 3(1 - 2\nu)/E$  である。一方、弾性ひずみエネルギー $W_p$  はクラックの拡張によるひず みエネルギーW。とクラックの無いマトリックス部分のひずみエネルギーW<sub>s</sub> との 和である。

クラックによるひずみエネルギーW。は、気孔(半径:ℓ)を含む岩石の圧縮性 (12) に関するWalshの理論的研究から次式のように与えられる。

ここで, ν : ポアソン比

β₀: クラックの無い圧縮係数

である。

平面ひずみ条件ではクラックの無い物体のヤング率を $E_0$ とすれば、 $\beta_0 = 3(1-2\nu)/E_0$ である。マトリックス部分のひずみエネルギー $W_s$ は、この $\beta_0$ (1405) を用いて次のように表わせる。

$$W_{s} = \frac{1}{2} \beta_{0} \sigma^{2} \qquad \dots \qquad (2-6)$$

一方,物体に 4 T の温度差が熱衝撃的に生じた場合の熱応力 σ は,次式で与えら
 (13)
 れる。

$$\sigma = \sigma^{*} \frac{\mathbf{E} \alpha}{(1-2\nu)} \Delta \mathbf{T} \qquad \dots \qquad (2-7)$$

ここで、 $\sigma^*$ : 熱衝撃の激しさを表わす無次元応力

α : 熱膨張率

である。

 $UO_2 ペレットのような円柱体の熱衝撃の場合,<math>\sigma^*$ はBをビオ数(Biot (16) Number)とすれば次のように表わせる。

 $\sigma^{*} = (1 + 4 / B)^{-1}$  (2-8)

そして、hを物体と冷却媒体との間の熱伝達係数、Kを物体の熱伝導率、ro を物体の半径とする時、B = h ro / Kで与えられる。

以上の(2-5), (2-6), (2-7), (2-8)式から弾性ひずみエネ ルギー $W_p$  は次式のようになる。

一方, (2-3), (2-5), (2-6)式から次の関係が得られる。

物体の全自由エネルギーWは、この  $E / E_0 を (2 - 9)$ 式に代入して得た $W_p$  と (2 - 2) 式の $W_g$  とから $\ell$ の関数として次式で表わされる。

$$W(\ell) = \frac{3 (\alpha \cdot \Delta T)^2}{2 (1-2\nu)} (1+\frac{4}{B})^{-2} E_0 (1+\frac{16 (1-\nu^2)}{9 (1-2\nu)} N\ell^3)^{-1} + 2\pi G N\ell^2 \qquad (2-11)$$

#### 2.2 臨界温度差

温度差の増加により物体に蓄積される自由エネルギーが臨界値を越えると、クラ ックの進展が開始する。以下、このクラックの進展が起こり始まる温度差を臨界温 度差  $d T_e$  と呼ぶことにする。臨界温度差  $d T_e$  は、クラックの進展により系全体 のエネルギーが変化しないとのクラック進展条件  $(dW(\ell)/d\ell)_{\ell=\ell_0} = 0 \epsilon$ (2-11)式に適用することによって求められる。ただし、 $\ell_0$  は初期の潜在 クラック半径である。

潜在クラックの形状を球形と仮定しているので、(2-12)式右辺のN $\ell_{0}^{3}$ は、 単位体積あたりのクラック体積、すなわち気孔率を表わしている。気孔率をPとす れば、N $\ell_{0}^{3}$ =3P/4  $\pi$ で近似される。よって(2-12)式は次のように表わせる。

(2-12)'式から気孔率が大きいほど,また潜在クラック長さが短いほど臨界 温度差は増加することがわかる。

#### 2.3 臨界温度差におけるクラック長さ

臨界温度差4T。 までに蓄 積されたポテンシャルエネルギーの一部が運動エネル

ギーとなってクラックが進展させるが、これは弾性ひずみエネルギーの減少割合が 破壊表面エネルギーの増分より大きい間は継続する。そして、放出された全ポテン シャルエネルギーが全破壊表面エネルギーに等しくなったとき停止する。すなわち、  $\mathbf{4}$ T。におけるクラック半径  $\ell_1$  は、W( $\ell_0$ )=W( $\ell_1$ )の条件を(2-11)式 に適用することによって求められる。

初期の潜在クラックが短い場合には( $\ell_0 \ll \ell_1$ ), (2-13)式の左辺の N $\ell_0^2$  および右辺第1項の(1+16(1- $\nu^2$ )N $\ell_1^3/9$ (1-2 $\nu$ ))<sup>-1</sup>は無視できる。 そして, N $\ell_0^3$ =3 P/4 $\pi$ の関係を代入し整理すれば臨界温度差におけるクラック長 さ $\ell_1$ は次のように表わせる。

(2-14)式から 4T。によって生ずるクラック長さは気孔率が増加すると減 少することがわかる。

以上の物体のエネルギーと気孔率およびクラック進展長さとの関係は次のように 考えることができる。

(17) Griffithは半径とのクラックを含む物体の破壊条件を次のように与えている。

また, (2-10)式よりヤング率Eは次のように表わせる。

(2-15),(2-16)式の $\ell$ を消去し物体の応力( $\sigma$ )ーひずみ( $\varepsilon$ )関係を求めると次のようになる。

$$\varepsilon = \frac{\sigma}{E} = \frac{\sigma}{E_0} + \frac{128NE^3G^3}{9\pi^3E_0(1-2\nu)(1-\nu^2)^2\sigma^5} \dots (2-17)$$

(2-17)式の $\sigma-\epsilon$ の関係を示したものが図 2.1の実線である。図において 一点鎖線で示した $\sigma-\epsilon$ 関係は、 $\sigma=E_0(1+4(1-\nu^2)P/3\pi(1-2\nu))^{-1}\epsilon$ を表わしている。したがって、気孔率Pが大きくなるほど一点鎖線の勾配はなだら かになる。ここで、クラック密度Nがクラック長さんに依らず一定と仮定すれば気 孔率Pはんと比例関係が成り立つので、各々の気孔率に対応した一点鎖線はそれぞ れ一定のクラック長さんに対応する。なお、(2-17)式を表わす曲線の上側の 漸近線であるOKはクラックの無い物体の $\sigma-\epsilon$ の関係を示している。

いま直線OAで示されるような気孔率が小さい場合を考える。この時の初期潜在 クラック長さを ℓo とする。熱応力 o がOAに沿って上昇し破壊の臨界点Aに到達 すると破壊が開始される。破壊がひずみ一定のもとに進行すると仮定すれば,A点 で発生した破壊はB点に進みことで非破壊領域に入る。しかし,破壊はB点で停止 しない。それは物体が破壊表面を生ずるに必要なエネルギーより面積AJBに等し い過剰なエネルギーを持つためである。この過剰なエネルギーはクラックの運動エ ネルギーとなって破壊を更に進行させる。そして,面積AJBとBCDが等しくな る点Cで破壊は停止する。この時のクラック長さはℓ1 である。エネルギーの点か ら破壊過程をみると,最初に蓄積された面積OAEに相当する全エネルギーが,面 積AJBの運動エネルギーとOAJCの破壊表面エネルギーそれにOCEの弾性ひ ずみエネルギーに変換されたことになる。なお,クラック長さℓ1 から更に拡張す るためには熱応力が再び破壊の臨界条件を満足するD点まで増加しなければならな い。言い換えれば弾性ひずみエネルギーが面積ODFに相当するまで増大しなけれ ばならない。したがって,そのような条件を満足するまで**4**Tの増加に対してクラ ック長さは変化しないことになる。熱応力がD点に到達した後は,破壊は**4**Tの増 加,すなわち弾性ひずみエネルギーの増分に対し連続的にDからHへ進行する。

次に直線ODで示されるような気孔率が大きい場合(初期潜在クラック長さが $\ell_1$ ) は、熱応力がD点以上になると破壊が開始されるが気孔率の小さい場合と異なり動 的破壊は起こらない。そして、上述したように破壊は4Tの増加とともにDからH へと連続的に進行する。図から明らかなように、この時のクラック長さの変化は  $\ell_1 \rightarrow \ell_2$ であるから気孔率の小さい場合の変化 $\ell_0 \rightarrow \ell_1$ に比べて小さい。

以上のように,物体の気孔率が増加すれば熱衝撃によるクラックの進展長さは減 少することがわかる。



図 2.1 潜在クラックを有する物体の破壊条件

2.4 臨界残留強度

臨界温度差 4 T。によって,初期半径  $\ell_0$  から開始したクラックは半径  $\ell_1$  に到達して停止する。この時物体の破壊強度  $S_a$ を臨界残留強度と呼ぶことにする。

Griffithの式((2-15)式)に,(2-14)式で求めた $\ell_1$ を代入する ことにょり,臨界残留強度 S<sub>a</sub> は次のように求められる。

$$S_{a} = \left(\frac{1 \ 6 \ (1-2 \ \nu) \ N E^{2} G^{3}}{3 \ \pi \ (1-\nu^{2})^{2} \ (\alpha \cdot \Delta T_{c})^{2} E_{0}}\right)^{\frac{1}{4}} \left(1 + \frac{4 \ \frac{1}{B}}{B}\right)^{\frac{1}{2}} \left(1 + \frac{4 \ (1-\nu^{2})}{3 \ \pi \ (1-2 \ \nu)} \ P\right)^{\frac{1}{4}}$$

(2-18)

(2-18)式は、気孔率が増大するにつれ臨界残留強度 Sa は漸 増し、次第に 初期強度との差が小さくなることを示唆している。

2.5 初期破壊強度

UO2 ペレットの初期破壊強度は、Griffithの式((2-15)式)に気孔率の影響を考慮した補正を加えることによって次のように求められる。

ここで、Cは気孔率の破壊強度に対する補正係数であり、その物理的意味は次の ように考えられる。いま、寸法が等しく気孔率が異なる二つの物体に同一大きさの 外荷重(例えば引張荷重)が加わる場合を考える。荷重方向に垂直な断面では、気 孔率の大きい方が荷重を支えるマトリックス部分の総面積は相対的に小さいことか ら、その分マトリックス部の応力は増加し、物体は見掛け上低い外力で破壊するこ とになる。すなわち補正係数Cは、荷重を支えるマトリックス部の実効的断面積 と気孔率との関係を表わす定数である。Knudsenはセラミックスの結晶粒子の幾何 学的配列を理論的に解析し、マトリックス部分の実効的断面積が気孔率に対して指 数関数の関係にあることを導いている。すなわちC= exp(C<sub>1</sub>・P)。したがって (2-19)式は次のような形で表わされる。

$$S_{0} = \left(\frac{2 E G}{\pi (1 - \nu^{2})}\right)^{\frac{1}{2}} (\ell_{0})^{-\frac{1}{2}} e x p (C_{1} \cdot P) \qquad \dots \qquad (2 - 2 0)$$

-21-

なお,上式の定数C1, および初期クラック長さ Lo は,次章の(3-12)式 (1) で示す如くそれぞれ次のように与えられる。

ただし, PS:最大気孔径

GS:平均結晶粒径

である。

(2-21)式を(2-20)式に代入することにより,初期破壊強度は次のように求められる。

#### 5. 実 験

#### 3.1 試料

本実験に用いた試料は、気孔率が0.05,0.10,0.15の3種類のUO2ペレ ットである。ペレットの製造方法は次のとおりである。まず天然UO2粉末に所定 の気孔率を得るに必要なポアフォーマと潤滑剤を加え、V型ブレンダーで良く攪 拌,混合した後100~300MPaで混合粉末を冷間プレスし、グリーンベレ ット(一次圧粉成形体)を製作した。使用した天然UO2粉末は全て同一ロットの ものである。この粉末の特性および不純物分析結果を表2.1に示す。

BET Fish Tap Pou	specific surface ner subsieve size density r density	area 3.1 4.1 3.2 2.5	(m²/g) (µm) 2 (g/cm³) 5 (g/cm³)
Impurity	Amount (ppm)	Impurity	Amount (ppm)
Ag	<0.2	Mg	<1
A٤	5	Мп	<1
B	<0.1	Мо	2
C	61	N	<3
Ca	<2	Na	<39
Cd	<0.5	Ni	<4
Cl	<2	Pb	<2
Со	<3	Si	<6
Cr	2	Sn	<2
Cu	<1	V	<5
F	5	Zn	<20
Fe	<13	W	<2

表 2.1 UO2 粉末特性および不純物分析結果

気孔率が 0.1 0, および 0.1 5の UO<sub>2</sub> ペレットを得る場合には, ポアフォーマ として潤滑剤を兼ねるラウリン酸亜鉛 (Zn ( $CH_3$  ( $CH_2$ )<sub>10</sub>COO)<sub>2</sub>) をそれぞれ 1.3 wt%, 3 wt% 用いた。また,気孔率が 0.0 5のペレットを得る場合には, パラフィン,ポリエチレングリコール,ステアリン酸を四塩化炭素に溶解した液を 約 2 wt% 秤量し,これを天然 UO<sub>2</sub> 粉末に加えた。次に,このグリーンペレット を 9 2 % N<sub>2</sub> - 8 % H<sub>2</sub>の還元雰囲気中で 1 7 0 0 ℃, 2時間焼結し直径約 1 5 mm, 高さ約 8 mmの UO<sub>2</sub> ペレットを製作した。

製作したUО2ペレットの気孔率を,試料の密度から次のように求めた。

ただし, P : 気孔率

ρ : 試料の密度 (g/cm<sup>3</sup>)

 $\sigma_{o}$ : UO<sub>2</sub>の理論密度(10.96g/cm<sup>3</sup>)

である。試料の密度は、メタキシレン液を用いた液浸法で測定した。これら のうちから気孔率が、0.05±0.005または0.10±0.005,あるいは 0.15±0.005の範囲にあるようなUO2ペレットをそれぞれ15~20個 づつ採取し、各々の気孔率ごとに分類した。次に、各気孔率ごとにUO2ペレット を4~5個取り出し、ペレット両端部から厚さ約1mmの円板状試料を切り出した。 これらの円板状試料を樹脂に埋込み鏡面研摩の後、200~400倍の顕微鏡写真 を1試料断面あたり5~6枚づつ撮影し、それらの断面金相写真からインターセプ ト法で平均結晶粒径を測定した。また、同じ断面金相写真を用いて、試料の最大気 孔径、気孔密度をイメージアナライザ(ミリポア社製、πMC粒体計測システム) で測定した。表 2.2 に、試料の最大気孔径、気孔密度、平均結晶粒径を各気孔率グ ループの内で平均した値を示す。気孔率の増加にともなって、気孔密度も増加する が最大気孔径や平均結晶粒径は逆に減少する傾向がみられる。

走りり	供試せる。	ペレット	50	微細組織デー	- 4
27 /. /		~~~~~	רע יו		~

Avg. porosity	0.05	0.10	0.15	
Avg. largest pore size (µm)	50	42	37	
Avg. pore density (Pore/m <sup>2</sup> )	2×10 <sup>8</sup>	3×10 <sup>8</sup>	4×10 <sup>8</sup>	
Avg. grain size (µm)	13	12	10	

3.2 熱衝撃実験

燃料棒が出力上昇する際,燃料ペレットには熱衝撃的に外周部から中心部にかけ 立上りの急な放物線状の温度分布が生じ,その結果ベレットの外周方向に最大引張 (0) 応力が発生する。本熱衝撃実験では、このような燃料棒出力上昇時における燃料ペレットの温度分布および応力分布に近い状態を再現できる加熱一急冷方式を採用した。図2.2 は熱衝撃実験装置の模式図である。試料をモリブデン製の皿に置き、こ れを縦型電気炉の石英ガラス製炉心管の内部に吊り下げ,種々の温度で20分間加 熱した後水槽中に落下させた。加熱中の試料の酸化などによる組成の変化を防止す るため,水分,酸素を除去した高純度アルゴンガスを流通させた。ガスの流量は5 ℓ/min とした。なお,本実験に先立ち,この雰囲気で加熱したUO2 ペレット のO/Uを分光光度法で測定し,試料の組成に異常を生じさせない雰囲気であること を確認した。電気炉の昇温速度は50℃/min とした。これは,試料が昇温中に クラックを発生しないような十分緩やかな温度上昇速度として設定したものである。 試料は図2.2 に示すように,UO2 ペレットの上下端にUO2 ペレットと同一寸法 のアルミナダミーペレットをアルミナセメントで接着した構造とした。これは,熱 衝撃時に試料UO2 ペレットに発生する温度分布が,実際の燃料ペレットの場合と 同じように半径方向のみの分布となり,軸方向には温度分布が生じないようにする ためのものである。



図2.2 熱衝撃実験装置の模式図

図2.3 は,水槽中に落下したダミーペレット付UO2 ペレットの温度分布を有限 要素法を適用した二次元過渡解析コードで計算した一例を示したものである。加熱 温度の高低によって多少の差はあるもの,水槽中に落下後,およそ1秒でペレッ トに最大温度差,最大引張応力が発生する。図2.3 は,その最大温度差を生じたと きの半径方向温度分布である。図からわかるように,外周近くでは温度分布は中心 に向って放物線状に降下する。このような温度分布は,燃料棒の出力上昇時にUO2 ペ レットに発生する温度分布と良く類似している。

熱衝撃を加えた後の試料の熱衝撃損傷は,以下に述べるように試料の破壊強度の 低下から評価した。熱衝撃試験後,ダミーペレットを取除きUO2 ペレットから厚 さ約2mmの円板状試料を精密切断機を用いて切り出した。この円板状試料の下面外 周部を支持し,上面中央部に円環荷重を加え2軸応力下で破壊させることにより 試料の破壊強度を測定した。ここで用いた破壊試験の方法,破壊強度の算出などに ついては,次章でより詳しく述べる。なお,破壊試験は室温で行った。



3.3 試料の物性測定

(1)(19 UO2 ペレットの機械的,熱的諸性質は,ペレットの微細組織に強く依存する。 そこで,第2節で述べたような熱衝撃損傷挙動に関与する物性値を供試ペレットの 一部を使って実際に測定した。以下,それらの物性測定について簡単に述べる。 (1) 破壊表面エネルギー(G)

UO2の破壊表面エネルギーは、測定技術上の難しさもあって公開データは極め 20~22
て少ない。 そこで、同一UO2 ペレットについて2種類の異なる方法で測定し、それらを比較検討することにより信頼性の高いデータを得るようにした。
(A) 三点曲げ方法

ペレットから長さ約15mm,幅約8mm,厚さ約4.5mmの板状試料を切出し, 長手方向中央部に極薄のダイアモンドカッタで幅約150µmの鋭いノッチを 設けた。このノッチ付試料を三点曲げにより破壊し,次式から臨界応力拡大係 2324 数Kicを求めた。

ここで, F:破壊荷重

w:ノッチ深さ

L:支持間隔

b : 試料幅

W:試料厚さ

Y:ノッチの形状係数

である。この内,Yは次式で与えられる。

Y = 1.93 - 3.07 
$$\left(\frac{W}{W}\right)$$
 + 1 4.53  $\left(\frac{W}{W}\right)^2$  - 25.11  $\left(\frac{W}{W}\right)^3$ 

$$+$$
 2 5.8 0 (  $\frac{W}{W}$  ) 4

ノッチの相対深さ(w/W)は、予備実験から0.2と設定した。また試験温度は室温,試料中央部の変位速度は50 μm/minと一定条件で試験を行った。
 (B) 圧痕法

ペレットから一辺が約25mmの立方体試料を切出し、一つの面を鏡面研磨の 後、この面に四角錐のサファイア圧子を圧入し表面に生じた圧痕とクラック長 さからKicを次式により求めた。

$$K_{IC} = H\sqrt{a} \left(\frac{E}{H}\right)^{0.4} \exp\left(2.303 \cdot Y\right)$$
 ..... (2-25)

とこで, a:四角錐圧痕の対角線長さの半分

E: ヤング率

H:ビッカース硬度(H=F/2 $a^2$ )

Y: クラックの形状係数

である。そしてYはeをクラック長さ、X=log(e/a)とすれば次式で与えられる。

 $Y = -1.59 - 0.34X - 2.02X^{2} + 11.23X^{3} - 24.97X^{4} + 16.32X^{5}$ 

サファイア圧子の荷重は、0.5 kgとした。この値は測定に適した圧痕の大き さ、クラック長さが得られるよう設定したものである。なお、圧痕やクラック 長さは試料表面を撮影した100~200倍の顕微鏡写真から測定した。試験 温度は、室温から1000℃までとした。雰囲気は0.1 Pa以下の真空雰囲気 である。

破壊表面エネルギーGは, (2-24)式および (2-25)式で得られた Kicを次式に代入して求めた。

$$G = \frac{(1-\nu^2)}{2E} K_{IC}^2 \qquad (2-26)$$

(2) 熱膨張率( a )

 $UO_2 の熱膨張率は,試料の熱膨張を直接高温顕微鏡を用いて測定する方法で$ 求めた。高温顕微鏡の試料ステージには,デジタルダイヤルゲージが取付けられており,顕微鏡の基線に合わせて試料の端面から端面まで試料ステージを移動させることにより,その温度における試料の全長を<math>1 / 1000 mmの精度で読み取 ることができる。この高温顕微鏡に,ペレットから切り出した,長さ約8 mm,幅 約4.5 mm,厚さ約0.9 mmの板状試料をセットし,0.1 Pa以下の真空雰囲気下で 室温から1000℃までの熱膨張量を測定した。

(3) 熱伝導率(K)

試料UO<sub>2</sub>の熱伝導率は,レザーフラッシュ法で熱拡散率Hを測定し,K=C・ H・C<sub>p</sub>・ $\rho$ として求めた。ここで,C:定数,C<sub>p</sub>:定圧比熱, $\rho$ :試料密度で ある。C<sub>p</sub>の値は,MATPRO-VO9<sup>20</sup>で提案されている値を採用した。測定温 度範囲は,室温から1000℃,雰囲気は $1.3 \times 10^{-3}$ Paの真空雰囲気である。

#### 4. 結果および検討

4.1 熱衝撃損傷の様相

図2.4(a)および(b)は,熱衝撃によって気孔率0.05の試料に発生した典型的な割 れパターンを熱衝撃温度差と関連して示したものである。熱衝撃温度が低い場合に は、ペレットの外周部から中心方向に向う直線的なクラックが少数発生するが,熱 衝撃温度差が高くなると外周からかなり内側まで屈曲して入ったクラックが 多数みられるようになる。このような割れパターンの相違は次のように考え られる。熱衝撃温度差が低い場合には,熱応力がUO2の破壊応力を越える領域は ペレットの外周部のごく狭い領域に限られるから、この領域に存在する気孔などを 潜在クラックとしてこれを核に破壊が発生する。これに対し,熱衝撃温度差が高 い場合には、ペレットの外周部から中央部までの広範囲にわたり、ほぼ同時に熱応力が 破壊応力を越えるから、単に気孔のみでなく破壊表面エネルギーの低い結晶粒界も クラックの発生核となり多数の核から同時発生的に多くの破壊が発生する。



(a)



(b)

図2.4 UO2ペレット割れパターンに及ぼす熱衝撃温度差(*A*T)の影響

(a)  $\Delta T = 2 \ 0 \ 0 \ C$  , (b)  $\Delta T = 8 \ 0 \ 0 \ C$ 

図2.5(a)および(b)に,熱衝撃実験で破壊した気孔率0.10の試料の外周部近傍で 観察された典型的な破面の電子顕微鏡(SEM)写真を示す。図 2.5(a)は,熱衝撃 温度差が約130℃,同図(b)は約550℃の場合である。これらの破面から,熱衝 撃温度差が低い場合(同図(a))は粒内破壊であり,熱衝撃温度差が高い場合(同 図(b))には粒界破壊が支配的であることがわかる。



(a)



10µm

#### 図2.5 熱衝撃により破壊したUO2 ペレットの破面

- (a) 熱衝擊温度差 (⊿T)=130℃
- (b)  $\Delta T = 550 °C$
BWR燃料棒のUO2 ペレットは、出力上昇時において1秒以内に最高400~ 500  $\mathbb{C}$ の熱衝撃温度差を受けると考えられる。

図2.6は、典型的な出力上昇を経験した燃料棒のUO2 ベレットの割れパターン (同図(b))を、炉外熱衝撃実験で約450℃の熱衝撃温度差を加えたUO2 ベレッ トの割れパターン(同図(a))と比較したものである。熱衝撃実験のベレットのクラ ックはやや屈曲し、かつ幅も一様でないが、これは実験後破壊した試料の取扱い の際破面の一部に局所的な欠落が生じたものである。これらの点を考慮すれば、 中心部に向う少数の太い貫通クラックと、外周部にある多数の細いクラックなど全 体的な熱衝撃損傷の様相は、実機UO2 ベレットのそれと良く類似している。なお、 この熱衝撃温度差では、破面は外周部で粒界破壊が支配的であるが内部に行くに つれ粒内破壊が支配的になってくる。



(a) 熱衝撃後の試料



(b) 照射済燃料棒のUO2 ペレット

図 2.6 炉外熱衝撃実験のUO2 ペレットの割れパターンと 実機燃料ペレットで観察される割れパターンの比較 (ΔT÷450℃) 4.2 熱衝撃温度差と破壊強度

図2.7 に、気孔率の最も小さいUO2 ペレット(P = 0.05)の、熱衝撃温度差 と破壊強度の関係を示す。この図から次のようなことがわかる。まず、試料の破壊 強度は,熱衝撃温度差が約100℃に達すると初期破壊強度の約½まで急激に低下 する。この急激な強度減少は、熱応力による弾性ひずみエネルギーが破壊に必要な 表面エネルギーを越え、クラックの進展が開始したためと考えられるから、そのと きの熱衝撃温度差は臨界温度差(4Tc)に相当する。熱衝撃温度差が臨界温度差 より更に高くなると、試料の破壊強度は臨界残留強度(S。)をしばらく保持した 後,熱衝撃温度差の増加とともに連続的に減少してゆく。そして,約400℃の熱 衝撃温度差で破壊強度はほぼ完全に喪失する。これは,この時点でUО2ペレット がばらばらに破砕してしまうことを意味している。以上のような熱衝撃温度差と破 壊強度の関係は,図2.1から定性的に説明できる。図2.1に示すように,気孔率が 小さい場合には、臨界温度差に達するとクラックは瞬間的にA点からC点(ℓ → *ℓ*<sub>1</sub>)まで拡張する。これが破壊強度の急激な減少に対応している。更にクラック を進展させるためには、温度差を更に上昇し試料の弾性ひずみエネルギーを面積OCE からODFに増加させなければならない。言いかえると、この間は温度差の上 昇に対しクラック長さは一定値(ℓ1)となり、その結果試料の破壊強度も一定となる。 そして、更に温度差が増大すると、クラックはD点からH点のように連続的に増加 してゆくので試料の破壊強度も温度差とともに連続的に減少する。



#### 図2.7 熱衝撃を受けたUO2 ペレットの破壊強度(気孔率: 0.0 5)

図 2.8 は、気孔率が中間の大きさのUO2ペレット(P=0.10)の熱衝撃温度差と破壊 強度の関係である。前述の気孔率が最小(P=0.05)の場合に比べ、気孔率が増 加すると試料の熱衝撃損傷挙動に次のような違いがみられる。

- ① 初期破壊強度は気孔率の影響を受け減少する。
- ② 臨界温度差は高温側にシフトする。
- ③ 臨界温度差における破壊強度の低下は小さくなる。
- ④ 破壊強度が完全に喪失する熱衝撃温度差は増加する。

これらの傾向は,図2.9に示すように,気孔率が最大(P=0.15)のUO2 ペ レットの場合において更に顕著になる。すなわち,気孔率が0.15になると0.05 の場合に比べて初期破壊強度は約半分になるが,臨界温度差における破壊強度の低 下は減少し,図2.9のように,初期破壊強度と臨界残留強度との差はほとんどみら れなくなる。そして,約100℃であった臨界温度差は130℃まで増加する。 気孔率0.05の場合は,約400℃の熱衝撃温度差でペレットの破壊強度が喪失し ていたが、気孔率0.15では600℃においてもまだ破砕せず、ある程度の強度を 維持していることがわかる。



図2.9 熱衝撃を受けたUO2ペレットの破壊強度(気孔率: 0.15)

-35-

### 4.3 実験値と計算値の比較

表2.3 に UO2 ペレットの熱衝撃特性に関与する物性値を示す。表において, 破壊表面エネルギー,熱伝導率,熱膨張率などの測定結果は平均値である。これらの 物性値を用いて,UO2 ペレットの熱衝撃損傷挙動を特徴づける初期破壊強度,臨 界温度差,臨界残留強度を第2節で導いた理論式から求め,それらの計算値と図 2.7~図2.9 から得られた実験値とを比較した。

Fracture surface energy	$(J/m^2)$ : G = 4	(*1)
Thermal conductivity	$(W/m^{\circ}C): K = (0.117 + 2.65 \times 10^{-4}T)^{-1}$ + 2.14 × 10 <sup>-11</sup> (T + 273) <sup>3</sup>	(*1)
Thermal expansion	$(1/^{\circ}C)$ : $\alpha = 8.37 \times 10^{-6} + 4.06 \times 10^{-9}T$	(*1)
Young's modulus	(Pa) : $E = 2.26 \times 10^{11} (1 - 1.131 \times 10^{-4} T)$ (1 - 2.62 P)	(*2)
Poisson's ratio	$: \nu = 0.316$	(*2)
Surface heat transfer coeff.	$(W/m^2 °C)$ : h = 4.187 × 10 <sup>3</sup>	(*3)

表2.3 供試UO2 ペレットの物性値

(*1) Measured value	T: Temperature (°C)
(*2) Reference No. 28	P : Porosity
(*3) Reference No. 18	· · · ·

表2.4 にその結果を示す。この表から,計算値は気孔率の増加とともに初期破 壊強度は減少すること,また臨界温度差は逆に増加すること,そして臨界残留強度 は気孔率とともに漸増し初期破壊強度に近づいてゆくことなど実験結果で得られ たそれらの傾向をよく表現していることがわかる。また,同一気孔率で初期破壊強 度,臨界温度差,臨界残留強度など各項目別に計算値と実験値を比較してみると, それぞれ絶対値には多少の違いがみられるものの,測定誤差などを考慮すれば計算 値と実験値は比較的良く一致していると思われる。なお,これらの差が生じた最大 の原因は,実際には試料表面に確率的に存在する粗大気孔,傷,マイクロクラックな どが破壊特性や臨界温度差を決める初期クラックとして重要な役割りをしているの に対して,計算値は試料の金相断面から測定した平均的な初期クラック長さを用 いて求めていることに起因すると考えられる。

Porosity Initial crack		Initial fracture strength S <sub>0</sub> (MPa)		Critical temperature difference ∆T <sub>C</sub> (°C)		Critical residual strength S <sub>a</sub> (MPa)	
P	$I_0(\mu m)$	Observed	Calculated	Observed	Calculated	Observed	Calculated
0.05	28	95	106	100	108	55	52
0.10	24	75	79	118	123	53	55
0.15	21	55	58	130	138	54	57

表2.4 熱衝撃損傷の計算値と実測値の比較

\* Initial crack radius =  $\frac{1}{2}$  [Largest pore size +  $\frac{1}{2}$  (Avg. grain size)]

図2.10は、初期破壊強度に対する臨界残留強度の比S<sub>a</sub>/S。と気孔率の関係 を示したものである。気孔率の小さい領域で計算値は実験値に対しやや低目にな る傾向がみられるものの、両者は比較的良く一致している。S<sub>a</sub>/S。はUO<sub>2</sub>ベ レットが熱衝撃を受けたとき、どの程度クラックが進展するかを表わす一つの指標 となるものである。言いかえれば、この値はUO<sub>2</sub> ベレットの熱衝撃損傷抵抗を表 わしている。UO<sub>2</sub> ベレットのクラックの増加は、FPガス放出を増大させる。ま た、それらのクラックが貫通しベレットが破砕するようになれば、第4章~第6章 に述べるようにベレットのリロケーションが増大し、燃料棒のPCIに影響を与え ることになる。したがって、UO<sub>2</sub> ベレットは熱衝撃損傷抵抗が大きい方が、すな わちS<sub>a</sub>/S<sub>0</sub>が大きいことが望まれる。この意味からは、UO<sub>2</sub> ベレットを低密度 化させる方が好ましいことになる。しかし、UO<sub>2</sub> ベレットをあまり低密度化する と熱伝導率の減少、破壊強度の低下を招き、別の面で燃料性能に悪影響を及ぼすよ うになるから、これらを総合的に評価した上でUO<sub>2</sub> ベレットの最適な密度、すな わち気孔率を決定してゆく必要がある。

-37-



図2.10 UO2 ペレットの熱衝撃損傷と気孔率の関係

5. 結 言

UO2 ベレットの出力上昇時における熱衝撃損傷と微細組織,特にペレットの破壊強 度に強く関与する気孔率との関係を明らかにするため理論解析と炉外熱衝撃試験を行っ た。熱衝撃試験では,実際のベレットが出力上昇時に経験する温度,熱応力分布に近い 状態を模擬できる加熱-急冷方式を採用した。供試UO2 ペレットの気孔率は,0.05, 0.10,0.15の3種類とした。熱衝撃試験前後で試料の破壊強度を測定し,破壊強度 の減少から熱衝撃損傷の程度を評価した。結果を要約すると以下のようになる。

- (1) 気孔率が大きいペレットは、小さいものに比べ以下のような点が顕著に現われた。
   ① ペレットの内部に新しいクラックを生ずる熱衝撃温度差、すなわちペレットが最初に損傷を受ける熱衝撃温度差(臨界温度差)は高い。
  - ② 熱衝撃を受けたときの、クラックの進展の度合、すなわちペレットの熱衝撃損傷の程度は小さい。
  - ③ ペレットが完全に破砕する熱衝撃温度差は高い。
- (2) UO2 ペレットの熱衝撃損傷挙動を理論的に検討し,気孔率,潜在クラック長さと 熱衝撃損傷との関係を表わす理論式を導出した。

- (3) 上記理論式を用いた臨界温度差,損傷の程度(熱衝撃による強度の減少),などの 計算値はいずれも実測値と良い一致をみた。
- (4) この理論式から,同一気孔率であれば潜在クラック長さが短い程,臨界温度が高く なることが予想された。
- (5) 以上の実験と理論的解析から、気孔率の大きいUO2 ペレット、あるいは気孔率が熱伝導率など他の理由で一定に押えられる場合には、短い潜在クラック(例えば、気孔)を 多数含有するようなUO2 ペレットを用いることにより、出力上昇時の熱衝撃損傷を 低減できると考えられる。

#### 6. 参考文献

- (1) Y. Mishima et al.: Trans. Amer. Nuc. Soc., 20, P222 (1975)
- <sup>(2)</sup> K. Ito et al.: Res Mechanics, 2, P109 (1981)
- (3) M. Oguma: Nucl. Eng. Des. to be published in 1983
- (4) B. Brozoska et al.: Trans. 5th SMIRT, D2/1 (1979)
- (5) D.. Lannings: Nucl. Technol., 56, P565 (1982)
- (6) A.D. Appelhans et al.: NUREG/CR-1425 (1980)
- (7) S. Sato et al.: Carbon, 13, P309, (1975)
- (8) G.W. Hollenberg: Am. Ceram. Soc. Bull., 59, 5, P538(1980)
- (9) G.W. Hollenberg and J.A. Basmajian: J. Am. Ceram. Soc., 65, 4 (1982)
- 40 A. Carpinteri and E. Lorenzimi: Nucl. Engrg. Des. 61, P1 (1980)
- (1) M. Oguma: J. Nucl. Sci. Technol., 19, P1005 (1982)
- 12 J.B. Walsh: J. Geophys. Res., 70, 2, P381 (1965)
- (13 D.P.H. Jasselman: J. Am. Ceram. Soc., 52, 11, P600 (1969)
- 14 J.P. berry: J. Mech. Phys. Solids, 8, P194 (1960)

- (1970) (1
- (4) W.D. Kingrey: J. Am. Ceram. Soc., 38, 1, P3 (1955)
  (7) A.A. Griffith: Phil. Trans. Roy. Soc., A221 (1920)
  (8) F.P. Knudsen: J. Am. Ceram. Soc., 42, 8, P376 (1959)
  (9) K.C. Radford: J. Nucl. Mater., 84, P222 (1979)
  (9) I. Inoue and H. Matzke: J. Nucl. Sci. Technol., 17, 12 (1980)
  (9) P.S. Maiya: J. Nucl. Mater. 40, P57 (1971)
- 22 H. Matzke and T. Inoue: idid 91, P205 (1980)
- 23 L.A. Simpson: J. Am. Ceram. Soc., 56, 1, P7 (1973)
- 24 M. Srinivasan and S.G. Seshadri: Fracture Mechanics for Ceramics, Rocks, and Concrete, ASTM-STP 745, P46 (1980)
- 29 S.S. Smith et al.: idid, P33 (1980)
- 89 R.D. Smith et al.: Ceramic Bulletin, 55, 11, P979 (1976)
  87 J.A. Coppola et al.: J. Am. Ceram. Soc., 55, 9, P481 (1972)

😂 T.K. Gupta: idid 55, 5, P249 (1972)

<sup>(29)</sup> MATPRO-V09 : TREE-NUREG-1005 (1976)

-40 -

第3章 二酸化ウランペレットの破壊強度

#### 1. 緒 言

UO2 ペレットの破壊強度は,前章で述べた出力上昇時のペレットの熱衝撃破壊,あ るいは次章以下で述べるペレットのリロケーション挙動を理解する上で最も基本的な物 性である。UO2ペレットの破壊強度に影響を与える主な因子としては、(1)ペレットの (1)~ 結晶粒径,気孔径,気孔率などの微細組織, (2)不純物や添加物などの異物,それに(3) 原料であるUO2粉末の特性,などがあるが商用炉燃料の製造のようにUO2ペレット が一定の原料と工程のもとに製作される場合には(1)のペレットの微細組織の影響が最重 要因子となる。これまでに,破壊強度に及ぼす気孔率の影響 や結晶粒径の影響, して気孔径の影響 に関しては数多く報告されている。しかし、結晶粒径、気孔径、気 孔率の影響を総括的に評価し、微細組織と破壊強度の関係を調べた例は少なく、筆者の (6) 知る限りにおいてはRadford の報告 だけである。Radford は,破壊強度を平均結 晶粒径,気孔率,それに中間(madian)気孔径の関数として表わしているが,Evans らの実験結果や本研究の予備実験結果は,破壊強度に影響を及ぼす気孔径として中間気 孔径を指標とすることが必ずしも妥当でないことを示唆している。本章における研究は UO。ペレットの破壊強度に及ぼす結晶粒径,気孔径,気孔率などの影響を明らかにす るとともに、このうちいずれが破壊強度に最も強く関与する微細組織であるかを見出す ことを目的に行ったものである。破壊強度の測定は, UO2 ペレットから切り出した円 板状試料を外周部分で支持し中央部にリング荷重を加える方法で行った。セラミックス の破壊強度の測定方法としては,従来から3点または4点曲げなどの単軸曲げ試験が広 く採用されてきた。しかし、これらの方法には試料のエッジ(edge)の加工状態や表 面の研削傷が破壊強度の測定に影響を与えるという欠点があった。本研究で採用したリ ング荷重方法によれば、試料に加わる応力は2軸応力状態となり上記の欠点が低減でき る。

#### 2. 実 験

2.1 試料の製作

UO2 ペレットは,全て前章で用いたものと同じバッチの天然UO2 粉末から製作した。ペレットの製造方法も基本的には前章で述べた方法と同じであるが,本実

験では特に微細組織の異なるペレットを得るため,1次成形圧力や焼結温度,焼結 時間などの焼結条件を変えてペレットを製作した。以下,ペレットの製造方法を簡 単に述べる。UO2粉末を所定分秤量した後,これにパラフィン,ポリエチレ ングリコール、ステアリン酸を混合した成形・潤滑剤を重量比で約2%添加し、 良く攪拌した。この粉末を種々の成形圧力(1.5~7.0 t/cm)で冷間プレスしグ リーンペレットを製作した。グリーンペレットの密度は, 4.0 ~ 5.7 g/ $cn^3$ の範囲 に分散していた。これらのグリーンペレットを還元雰囲気(92%N2-8%H2) で焼結した。焼結温度は1700℃および1750℃,焼結時間は2,3,8h とし、焼結温度、焼結時間を適宜組み合わせた。ペレットの0/Uは200 ±0.01でほぼ定比性が保たれていた。ペレットの焼上り寸法は,直径約15mm, 高さ約8㎜であった。ペレットの上下両端部には焼結収縮による凹凸があるためそ れぞれの端部を厚さ 0.2~0.5mmで切断除去した。精密切断器(スライシングマシ ン)で残りの部分から厚さ1.5~2.0mmの円板上UO2を切り出し,破壊強度測定 用の試料とした。スライシングマシンによる試料の切断面はそれ自体平滑であるが、 切断で生じた傷など異常が認められたときには切断面を600~1000#のエメ リー紙で軽く粗研磨した。試料の厚さのバラッキ,すなわち平行度を調べるため精 度1/1000のマイクロメータで,試料の周方向0°,45°,90°間隔で直径 方向に各々5点づつ厚さを測定した。厚さのばらつきは土20μm以下と試料の平 行度は良好であった。

微細組織は各円板状試料を樹脂に埋込み鏡面研磨した後200~400倍の顕微 鏡写真を1試料あたり4~5枚撮影し,それらの写真から測定した。測定方法は前 章の場合と同じである。すなわち,平均結晶粒径はインターセプト法で,気孔率は 液浸法で,気孔径はイメージアナライザによりそれぞれ測定した。

#### 2.2 破壊強度試験

試料の破壊強度は室温で測定した。用いた試験機は電気油圧式材料試験機(MTS 社製モデル810−11全自動システム)である。図3.1に破壊強度試験測定治具 の構造を示す。下側の治具で円板状試料の外周部を支持し,上側の治具で中央部に リング荷重を加え試料を破壊させる。破壊時の最大荷重から試料の破壊応力は下式 から求められる。

$$\sigma_{f} = \frac{3W}{2\pi h^{2}} \{ (1-\nu) \frac{b^{2}-a^{2}}{2b^{2}} \cdot \frac{b^{2}}{d^{2}} + (1+\nu) \ell_{n} \frac{b}{a} \} \dots (3-2)$$

ここで, **σ**<sub>f</sub>: 破壊応力(MPa)

W : 破壞荷重(N)

- ν : ポアソン比
- a : 上部治具のリング直径(mm)
- b : 下部治具の試料支持直径(mm)

d : 試料の直径(mm)

h : 試料の高さ (mm)

である。

試料に加わる応力状態は,半径方向および周方向の2軸状態となる。そして,大きさの等しい最大応力が中央リング荷重の加わる試料の裏面に発生する。なお,試験機の荷重軸の駆動速度は100μm/minである。



## 図 **3.1** 円板状 UO<sub>2</sub> 試料の破壊強度測定治具

-43-

#### **3.** 結果および検討

## 3.1 試料の微細組織

合計20個のUO2ペレットの気孔率,および平均結晶粒径の範囲は,それぞれ 3.6~8.8%,7~90µmであった。ペレットの焼結条件と得られた微細組織と の関係では,グリーンペレットの密度と焼結温度が高くかつ焼結時間が長いもの ほど,ペレットの気孔率は小さくまた平均結晶粒径が大きいという定性的関係がみ られた。平均結晶粒径について整理すると,試料は7~30µmの比較的細い結晶 粒を持つものと,60~90µmの粗大結晶粒を持つものとの2群に分かれた。表 3.1に各々の平均結晶粒径の範囲に含まれる試料の気孔径,気孔率の範囲を示す。 気孔径は結晶粒径が粗大化するとともに大きくなる。中間気孔径よりも最大気孔径 の方がその傾向は顕著に現われている。また,気孔率は結晶粒の成長によって僅か に減少する傾向がみられる。

	Grain size (µm)		
	7~30	60~90	
Pore size (µm) <u>largest</u>	12~36	53 <b>~</b> 78	
median	$2 \sim 5$	3~14	
porosity (%)	4.8~8.8	3.6~4.3	

表 5.1 UO2 ペレットの微細組織

図 **5.2** に微細結晶組織を持つ試料と粗大結晶組織を持つ試料の断面金相写真の一例を示す。結晶粒が小さい試料では球状の小気孔が試料断面の全域にわたってほぼ 均一に分布しているのに対し,結晶粒が粗大化した試料の場合は結晶粒内の気孔

-44-

はほとんど消滅し、代りに結晶粒界に粗大気孔が数多く見られた。気孔率が5%の 標準的微細組織を持つ試料で観察された最大気孔は、その試料の平均結晶粒径の約 2倍の大きさを有していた。また、図3.3に示すように最大気孔は複数の結晶粒に よって囲まれており、これらの隣り合う結晶粒が互いに接触する部分に鋭い角度を 持つ溝が形成していた。



(a)



(b)

 $1 0 0 \mu$ m

図 **3.2** U O 2 ペレットの断面金相 (a) 微細結晶粒を有する試料 (b) 粗大結晶粒を有する試料



図 **3.3** 粗大気孔の内側(SEM) (結晶粒が互いに接する部分に鋭い切欠き状のくぼみが見られる)

3.2 気孔率の影響

セラミックスの破壊強度が気孔率と強い相関を持つことは良く知られている。す なわち,気孔率の増加は,単純には引張荷重を受ける実効的断面積の減少となるか ら,その面積減少分だけ焼結体の破壊強度は減少することになる。そして,気孔率 と実効断面積との関係については前章2.5項で述べたように,実効断面積が気孔率 (9) に対して指数関数的に変化する関係が得られている。このことから,破壊強度は気 孔率をPとしたとき下式のような指数関数で表わすことができる。

ただし, σ, C1:定 数 である。

(2-19)式と比較することにより、 $\sigma$ は未知の値  $\ell_0$  (潜在クラック長さ) を含む $(2 \text{ EG}/\pi (1-\nu^2))^2 (\ell_0)^{-\frac{1}{2}}$ に対応していることがわかる。

図3.4に破壊強度と気孔率の関係を示す。



# 図 3.4 UO2の強度に及ぼす気孔率の影響

-47-

図3.4は、平均結晶粒径や平均気孔径がそれぞれ8~16µm,2.5~3.5µm と狭い範囲にある試料を選択し整理したものである。この理由は、破壊強度に対す る気孔率の効果が結晶や気孔など他の微細組織の違いによって不明瞭になるのを 防ぐためである。図3.4から、気孔率の増加とともに破壊強度が指数関数的に減少 していることがわかる。データを最小自乗法でフィッティングした直線は下式で与 えられる。

σ<sub>f</sub> = 1 3 3 e x p (−0.0 9 · P) ..... (3−4) 3.3 結晶粒径の影響

多結晶体の平均結晶粒径(GS)と破壊強度の関係は、破壊理論から導かれた Orowan - Petch の式((3-5)式),あるいは実験的に導出されたKnudsen の式((3-6)式)のいずれかによって表わすことができる。

$$\sigma_{\rm f} = \sigma_{\rm o} + {\rm K} ({\rm G S})^{-\frac{1}{2}}$$
 ..... (3-5)

 $\sigma_{\rm f} = C (GS)^{\rm n} \qquad (3-6)$ 

ここで, **o**。 :転位の動きに対する抵抗力

K : initiation に必要なエネルギーとすべり帯の幅に依存する項
 C, n : 実験定数

である。

(3-5)式は一般に、金属材料の破壊強度を良く近似するが、セラミックスのような脆性材料では必ずしも指数項が一½にならないことが多く、むしろ(3-6)式の方が良い近似を与える場合が多い。この理由は、内部に多数の気孔を含むセラミックスではこれらの気孔が支配的な破壊源となり、粒径の効果が十分現われないためと説明されている。このように、 $UO_2 \sim \nu_{yh}$ の結晶粒径と破壊強度の関係を調べるにあたっては、特に気孔の影響について注意を払う必要がある。そこで、まず平均気孔径が2.3~3.0  $\mu$  mとほぼ一定とみなせる試料群を選択した。次に、これら試料間の気孔率の違いによる破壊強度への影響を除くため(3-3)式を用いて気孔率を全て5%に補正し気孔率効果を一定にした。図3.5 にその結果を示す。両対数グラフ上のデータを最小自乗法でフィッティングした直線は下式で表わせる。

 $\sigma_{\rm f} = 1.2.8 \, ({\rm G}\,{\rm S}\,)^{-0.1.26} \, \dots \, (3-7)$ 

-48-

ここで, GS:平均結晶粒径(µm)

である。

(3-7)式の相関係数Rの値は-0.639で,結晶粒径と破壊強度との間の相
 (6)
 関性が弱いことを示している。Radfordは,気孔率が約2%の高密度UO2ペレットについて平均結晶粒径(GS)と破壊強度の関係を求め,(3-8)式を得ている。

(3-7)式,(3-8)式から明らかなように,平均結晶粒径の破壊強度に対 する寄与度を表わす指数の値は,Radfordの結果と本実験のそれとは良く一致し ている。なお両式に見られる破壊強度の絶対値の違いは,試料の気孔率や気孔径の 違いによるものと考えられる。



図 3.5 UO2の強度に及ぼす結晶粒径の影響

#### 3.4 気孔径の影響

セラミックスの内部に存在する気孔は,破壊強度を考える上で最も重要な潜在的 欠陥(き裂)であると考えられている。 $UO_2 ~ \nu \nu \nu \rho$ の気孔は結晶粒径に比べ ると広い径分布を持っているため,どの径をもって試料の気孔径を代表させ るかが問題となる。前節と同じように,気孔以外の微細組織の効果を打消すため, 実験で得られた破壊強度の値から(3-4)式および(3-7)式を用いて試料の 気孔率,平均結晶粒径をそれぞれ5%,12 $\mu$ mに規格化したときの破壊強度を求 めた。Radford が検討したように<sup>(6)</sup>破壊強度と中間気孔径との関係を調べた結果 が図**3.6**である。



図 3.6 UO2 の強度と中間気孔径および最大気孔径の関係

図 **3.6** から明らかなように、中間気孔径一破壊強度の関係では全体的に気孔径の 増加とともに破壊強度が減少する傾向が見られるが、中間気孔径との間に明確な相 関は得られていない。特に中間気孔径が小さい領域( $2 \sim 5 \mu$ m)に大きなばらつ きがあること、それより大きい領域( $5 \sim 1.0 \mu$ m)において破壊強度の気孔径依存 性が失われている点などは,破壊強度を支配する気孔が中間径を持つ気孔ではない ことを示唆している。一方,最大気孔径で整理した場合には,図3.6に示したよう に破壊強度との間に良い直線関係が得られた。一般に,中間径を持つ気孔はマトリ ックス中にほぼ均一に分散している気孔であるのに対し,最大径の気孔は粒内の小 気孔が焼結過程で粒界に掃き出され,そこで合体し成長した気孔である。これらの 気孔が同一の引張荷重を受けるときは,粒内にある小気孔より粒界に存在する粗大 気孔の方が優先的に拡張し,き裂を発生すると推測できる。最大気孔径と破壊強度 との間の良い相関関係は,これを裏付けている。これらの結果から,破壊強度を支 配する気孔は最大径を持つ気孔であると考えられる。図3.6に示した最大気孔径-破壊強度の関係は,最大気孔径をPS(µm)とするとき次式で表わされる。

なお, (3-9)式で表わされる直線の相関係数Rの値は,-0.922である。

破壊強度に及ぼす気孔の影響については,気孔の大きさだけでなくその形状をも 考慮しなければならない。球形気孔と偏平気孔とでは,それぞれ直径,長径が等し くとも一般的には切欠き効果の大きい偏平気孔の方が破壊強度に強い影響を及ぼす。 しかし,UO2ペレットの気孔径の指標として最大気孔を考える限りにおいては, これらは複数個の結晶粒で形成される鋭い切欠きを有し,その形状は径に依らずほ ぼ一定とみなすことができるので,形状については特に考える必要はない。

3.5 臨界き裂(欠陥)寸法

UO2 ペレットの潜在欠陥である気孔や結晶粒界などのうち,ペレットの破壊 強度を支配する破壊源がどのような潜在欠陥であるかを知ることは,ペレットの強 度特性を理解する上で重要となる。

潜在欠陥を含む物体が脆性破壊を起こす場合の破壊強度は,Griffithの理論から下式のように表わせる。

$$\sigma_{\rm f} = \left(\frac{2 \ \gamma \ {\rm E}}{\pi \ {\rm a}_{\rm 0}}\right)^{\frac{1}{2}} \qquad (3-1 \ 0)$$

ここで, γ:破壊の表面エネルギー

-51-

E: ヤング率

a。: 臨界き裂寸法

である。

ここでは、上式に実測値である破壊強度、およびヤング率、破壊の表面エネルギーを代入し、試料の臨界を裂寸法a。を求め、これと気孔径や結晶粒径との関係を調べた。 $\gamma$ の (12) 値には、Matzkeらが indentation 法で求めた値 1.79 J  $/ m^2$ を用いた。また、 Eの値は MATPRO-VO9 で採用されている次式に試料の気孔率を代入して算出 した。

 $\mathbf{E} = 2.256 \times 10^{5} (1 - 2.62 \times \mathbf{P}) \qquad \dots \qquad (3 - 11)$ 

ここで, E:室温におけるヤング率(MPa)

P: 気孔率(%)

である。

図3.7 は臨界を裂寸法 a。 に対し, 試料の最大気孔径 かよび平均結晶粒径を比較 したものである。平均結晶粒径は a。 に比べてかなり小さい。一方, 最大気孔径は a。 に対して僅かに小さいものの全般的には良く対応している。この結果は, 最 大気孔径が単独ではないにせよ破壊強度を支配する潜在欠陥(き裂)として重要 な役割を持っていることを示唆している。図3.3 に示したように, 最大気孔は複数 の結晶粒によって形成されており, 結晶粒が接触する部分は鋭い切欠き形状を呈し ている。また, 実際の燃料棒に用いられる気孔率が5%, 平均結晶粒径が10~ 20µmの標準的なUO2 ベレットについて金相観察を行った結果, それらベレッ トの最大気孔径はいずれも平均結晶粒径のほぼ2倍であることがわかった。一方, 気孔がある方向に引張応力を受けると, 応力方向と垂直な面にある結晶粒界は大き な切欠きによって容易に剝離すると考えられる。したがって, この結晶粒界の部分 も気孔と同様潜在き裂(欠陥)とみなすことができる。いま結晶粒界の長さを結晶 粒径の半分と仮定すると潜在き裂の寸法aは, 最大気孔径をPS, 平均結晶粒径を GSとして, a=PS+½GSとなる。

-52-



図 3.7 臨界き裂寸法と試料の先在き裂(欠陥)寸法の比較

図 **3.8**は臨界き裂寸法 a。と潜在き裂寸法 a を比較したものである。最大気 孔とそれに隣接する結晶粒界を潜在き裂とみなしたき裂寸法 a は,臨界き裂寸 法 a。と良く一致している。

前章の結論の一つは、「UO2 ペレットの熱衝撃による損傷を小さくするには、 気孔率を増加し潜在クラックの長さを短くすること」であった。これと本章の結果 から次のような結論が導びかれる。

ペレット表面で熱応力が最大となるから、ペレット表面の粗大気孔が小さく、しかも気孔率の大きいUO2 ペレットを使用することにより出力上昇時の熱衝撃損傷 を低減できる。



## 3.6 破壊強度と微細組織の関係式

UO2 ベレットの破壊強度は,最大応力を受ける面に存在する大きな気孔と,そ の気孔が形成する鋭い切欠き先端延長上にある結晶粒界とを潜在き裂とみなすこと により良く説明できることがわかった。そして,気孔率はこれらの潜在き裂周辺の 応力状態を決める因子であり,気孔径や結晶粒径と独立に破壊強度に寄与する役割 をもつと考えられた。ところで,破壊強度と気孔率,平均結晶粒径,最大気孔径と の関係を表わす(3-4),(3-7),(3-9)式は,それぞれ対象とする微細組 織バラメータ以外の微細組織バラメータの範囲を限定している。例えば気孔率と破 壊強度の関係を与える(3-4)式では,この式が成り立つ気孔径(2.5~3.5  $\mu$ m),結晶粒径(8~16 $\mu$ m)の範囲に限定されている。そこで,これらの制 限を取除いた一般式を求めるため(3-4),(3-7),(3-9)式を用いて更に データを規格化し整理した。その結果導出したものが次式である。

$$\sigma_{f} = 626 \times (PS + \frac{1}{2}GS)^{-\frac{1}{2}} exp(-0.057 \times P) \dots (3-12)$$

(3-12)式の適用性を調べるため、約70個のUO2 試料について実測値と 計算値の比較を行った。これら試料の気孔率、結晶粒径、気孔径の範囲はそれぞれ 気孔率:  $3 \sim 10$  %、最大気孔径  $12 \sim 100 \mu$ m、平均結晶粒径:  $6 \sim 90 \mu$ m であった。結果を図 5.9 に示す。図中の点線は、実測値に対する $\pm 10$  %の幅を 示したものである。計算値は全て 2本の点線で囲まれる領域に入っている。この結 果から、UO2 ペレットの破壊強度は(3-12)式によりほぼ $\pm 10$  %の精度で 予測できることがわかった。



-55-

## 4. 結 言

UO2 ペレットの破壊強度に及ぼす微細組織の影響を調べた。破壊強度はUO2 ペレ ットから切り出した薄い円板状試料を外周で支持し、中央部にリング荷重を加え破壊さ せる方法で測定した。この場合,試料には最大等価2軸応力が試料裏面のリング荷重に 対応した位置に発生する。試料の微細組織パラメータは、気孔率3.6~8.8%、平均結 晶粒径7~90μm、平均気孔径2~14μm、最大気孔径12~78μmである。

- (1) 気孔率,結晶粒径,気孔径の増加はいずれもUO2ペレットの破壊強度を減少させる。破壊強度は気孔率,気孔径に強く影響される。しかし,結晶粒径の影響は小さい。
- (2) Griffithの式から求めた臨界き裂寸法(a。)を,試料の気孔径や結晶粒径と比較した結果,最大気孔径がa。に最も近いことがわかった。このことから,粗大気孔はペレットの潜在欠陥(き裂)としてUO2ペレットの破壊強度を支配するものと考えられる。
- (3) 最大気孔は複数の結晶粒に囲まれており、気孔の内側には結晶粒が合体した所で 鋭い切欠き状の凹部が形成されていた。ペレットに十分な大きさの引張応力を加える と、これらの切欠き効果により気孔を囲む結晶粒の粒界は容易に分離され、気孔の拡 張が生ずるので、最大気孔径にその部分の結晶粒界の長さ(平均結晶粒径の½)を加 えたものaを潜在き裂寸法と仮定した。これは実験データをGriffithの理論式で整 理して得た臨界き裂寸法 a。と良く一致した。
- (4) U O<sub>2</sub> ペレットの破壊強度は,次式で与えられる。

$$\sigma_{\rm f} = 6\ 2\ 6\ ({\rm PS} + \frac{1}{2}\ {\rm GS})^{-\frac{1}{2}}\ {\rm exp}\ (-0.0\ 5\ 7\times{\rm P})$$

ここで、 $\sigma_f$  は破壊強度(MPa)、PSは最大気孔径( $\mu$ m)、GSは平均結晶 粒径( $\mu$ m)、Pは気孔率( $\mathfrak{G}$ )である。

(5) 上式により、気孔率が3~10%、平均結晶粒径が6~90µm、最大気孔径が
 12~100µmの範囲にあるUO2ペレットの破壊強度を±10%の精度で予測す
 ることができる。

(6) 粗大気孔を減らすことはUO2 ペレットの破壊強度を高くし、また、特にペレット 表面の粗大気孔の減少は熱衝撃損傷を低減するものと考えられる。

## 5. 参考文献

- (1) J. T. A., Roberts, Y.Ueda ; J. Amer. Ceram. Soc., 55 [3],
   117 (1972)
- (2) R. F. Canon, et al.: ibid 54 [2], 105(1971)
- (3) N. Igata, K. Domoto, : J. Nucl. Mater., 45, 317(1972/73)
- (4) A.G. Evans, R.W. Cavidge, : ibid 33, 249 (1969)
- (5) F.P. Knudsen, et al.: J. Amer. Ceram. Soc., 43 [12], 641 (1960)
- (6) K.C. Radford, :J. Nucl. Mater., 84, 222 (1979)
- (7) A.A. Solomon, : J. Amer. Ceram. Soc., 55[12], 622 (1972)
- (8) M.D. Burdick, H.S. Parker : J. Amer. Ceram. Soc.,
  39 [5], 181, (1956)
- (9) F.P. Knudsen : ibid 42[8], 376 (1959)
- (1) A.G. Evans : "Fractune Mechanics of Ceramics", Vol.6, Heidelberg, 323 (1958)
- (1) A.A. Griffith,: Phil. Trans. Roy. Soc., A221 (1920)
- H., Matzke. and T. Inoue : J. Nucl. Mater. 91, 205 (1980)
  CSNRC : TREE-NUREG-1005, (1976)
- (4) S.C. Carniglia : J. Amer. Ceram. Soc. 48, 580 (1965)

## 1. 緒 言

本章および第5章,第6章では,UO2ペレットの出力上昇に伴う変形挙動の解明と モデル化に関する研究について述べる。

燃料棒のペレットと被覆管との間には,製造時に一定のギャップ (gap)が設けられており, 照射中に生じるペレットの半径方向熱膨張やスエリングを吸収する空間を提供している。 ペレットは出力上昇の初期段階で熱衝撃的に割れ、ペレット内に割れ空間が形成される。 このペレット内の新しい空間は,ギャップの減少によって相殺される。出力が更に上昇 するとペレットの割れと熱膨張とが共に増加するからギャップはますます減少し、遂に (2) はハードPCIを起こすようになる。このようなペレットの割れや,割れたペレットの みかけ直径の増加,すなわちリロケーションに起因する照射中のギャップの変化は,燃 料温度,FPガス放出,PCIなどに大きな影響を与える因子である。~したがって, 割れやリロケーション挙動を正確に把握することが燃料棒の正しい性能予測あるいは寿 命評価の上で必要になってくる。しかし、照射中のペレットの割れやリロケーション (6)(7) (またはギャップ)は直接測定できないので燃料棒の温度や内圧データ, あるいは照 (1)(12) 射後試験の金相観察データ などから間接的に算出せざるを得ないこと,それに割れ挙 動は確率的で定量化しにくい現象であることなどもあってリロケーション挙動はまだ十分 に解明されていない。例えば,燃料挙動解析コードに組込まれているリロケーションモ デル、あるいはギャップモデルの多くは、出力上昇と同時に初期ギャップの一定量が減 (8)~(10) 少するという単純な仮定から作られている。 そして,このギャップ減少量,言いかえ ればリロケーション量には,照射済燃料棒の残存ギャップの測定データなどから経験的 な定数が与えられているだけで,出力上昇時のペレットの挙動についてはほとんど考慮 されていない。「割れたペレットの挙動に言及したリロケーションモデルは,筆者の知 る限りでは割れ幅とペレット内の応力とを関連づけたWilliford らの crack com-13~15 pliance モデル以外例をみない。 しかし彼等のモデルも,照射後試験で得られたペ レットの横断面金相データに基づき代表的な割れパターンをあらかじめ仮定しているだ けで,出力とリロケーションとの関係を厳密に取扱っているわけではない。このように、 出力上昇時の割れやリロケーション挙動(あるいはギャップ挙動)は燃料挙動予測の最 も不明瞭なものの一つとなっている。

本章での研究は、出力上昇過程におけるUO2 ペレットの割れ挙動とリロケーション挙 動を明らかにすることを目的とし、燃料棒の照射実験とペレットの熱変形解析とを行っ たものである。照射実験では、照射中のギャップを解析し、これから間接的に出力上昇 時のリロケーション挙動に関する情報を得た。ペレットの熱変形解析では出力と割れ パターン、割れパターンと見掛直径の増加、などを解析的に調べ、リロケーションをより定 量的に把握しようと努めた。これらの知見に基づいて、リロケーションに起因したソ フト領域のギャップ変化を記述するギャップ閉塞モデルを作成した。

#### 2. 燃料棒照射実験

出力上昇中の燃料棒ギャップがどのように変化するかについての情報が得られれば,間接的にソフト P C I 領域におけるペレットの割れとリロケーション挙動を知ることができる。このようなことからノールウェー国のハルデン炉(HBWR)において計装付燃料棒の照射実験を行った。

#### 2.1 供試燃料棒および照射実験

供試燃料棒は,密度95% TD(理論密度比)7% 濃縮UO2 ベレットを内径約 124 mmの応力除去焼鈍したジルカロイー2被覆管に装填した,長さ約700 mmの 短尺燃料棒3本(A1,A2,A3)である。表4.1 にA1,A2,A3燃料棒の 主な設計仕様を示す。燃料棒の基本的な設計仕様はBWR7×7改良型燃料仕様 と同じであるが、ベレットの直径を増減しギャップをそれぞれ200,300, 400  $\mu$  mとしている。燃料棒内には常温で1気圧のHeガスが封入されている。 これらの燃料棒を他の同一寸法の短尺燃料棒5本とともに1体の集合体に組み、こ れをHBWR(ハルデン重水沸騰型原子炉)に装荷し照射した。図4.1 に燃料集合 体の構造を示す。本実験に用いたA1,A2,A3燃料棒は上部クラスタに位置し ており,各々には燃料棒伸び検出器の他に燃料中心温度測定用の熱電対が組込まれ ている。燃料集合体には燃料棒の出力と冷却水温度計測のため,2個のタービン流 量計,2組の熱電対,径方向,軸方向に各々4本の中性子束検出器が装備されている。 1個の軸方向中性子束検出器取付位置は、A1~A3燃料棒の熱電対先端位置に対 応している。これは、ギャップ解析を行う軸方向位置が燃料中心温度測定位置(熱 電対先端)であることから、その位置での出力を正確に得るためである。

## 表4.1 HBWR照射燃料棒の主な設計仕様

Item	Rod	A1	A2	A3
Initial gap ( )	m)	400	300	200
UO <sub>2</sub> pellet				
Diameter Length Density Pellet Form Enrichment	(mm) (mm) (%TD)	12.02	12.12 12.70 95 Chamfer 7.0	12.22 red
Zr-2 Cladding Outer dia. Thickness Heat Treatmen	(mm) (mm) nt		14.30 0.98 Full Anne	al
Fuel rod Filler gas Fuel length	(mm)		He (1ath 474	n)
Instrumentation	(11111)		500	
Fuel centerline Elongation detec	(T∕ <sub>C</sub> ) ctor		Yes Yes	





-61-

なお,燃料棒の軸方向出力は次のように求める。まず,軸方向の中性子東分布を 次式で近似する。

ととで, FZ(z): 高さzでの中性子束

L : 燃料棒全長

n : 中性子検出器の番号

である。

軸方向4ヶ所に配置された中性子検出器の位置zとFZ(z)の値から定数Cn が得られる。このようにして求めた軸方向中性子束分布が出力分布に等しいと仮定すると,熱電対位置での燃料棒4本の合計出力QT が次式で与えられる。

$$Q_{T} = Q_{0} \cdot \frac{FZ(T)}{\int_{0}^{L} FZ(z) dz} \qquad \dots \qquad (4-2)$$

ここで, Qo : 燃料集合体全出力

FZ(T):熱電対位置での中性子束

である。

次に4個の径方向中性子東検出器から得られる中性子東分布が燃料集合体内の径 方向出力分布を現わしていると仮定することにより,燃料棒の熱電対位置の出力Q は次式から得られる。

 $Q = Q_T \cdot \frac{FX_i}{\sum_{i=1}^{4} FX_i} \qquad \dots \qquad (4-3)$ 

ここで, FXi:半径方向位置iの中性子束

である。

燃料集合体は,HBWRの通常の出力履歴に沿って約3年間照射された。その期間の燃料棒の平均出力上昇速度は,約2W/cm/minであった。また,最高出力

-62-

および最大到達燃焼度はそれぞれ、約350W/cm,および約17,000MWD/Tで あった。照射終了後、供試燃料棒はノールウェー国のシェラー研究所において  $\dot{\mathbf{F}P}$ ガス測定、金相試験など一連の照射後試験が実施された。

2.2 照射中ギャップの解析方法

照射中の燃料棒のギャップは、ペレットの割れやリロケーションと同様に直接測 定できないが、燃料棒の出力、中心温度、冷却水温度などの炉内計測データが得ら れれば以下のような方法で間接的にギャップを知ることができる。燃料中心温度、 冷却水温度、燃料棒出力からペレット表面温度(T<sub>1</sub>),被覆管内面温度(T<sub>2</sub>)、 表面熱流束(Q)を算出すれば、ペレットー被覆管間隙の熱伝達係数(h,以下、 ギャップコンダクタンスと言う)は、 $h = Q(T_1 - T_2)$ で与えられる。一方、h はギャップの関数であるから、ギャップコンダクタンスモデルを設定すれば、既知 であるhの値から逆にギャップを求めることができる。ここでは、燃料設計など で広く用いられているRoss and Stauteのギャップコンダクタンスモデルを採 用した。すなわち、照射中のギャップ(G)は、次式で与えられる。

ここで,K : ギャップに存在する気体の熱伝導率(W/cm℃)

R1,R2 :ペレットおよび被覆管の表面粗さ(cm)

 $(g_1 + g_2)$ : ガス層による温度ジャンプ距離(cm)

である。ここでKの値としては,燃焼のごく初期では燃料棒製造時に充填されるヘ リウム (He) ガスの 熱伝導率をそのまま用いることができるが,燃焼が進行した 後の解析では F P ガスの影響を考慮する必要がある。本解析では,照射後試験で測 定された F P ガス量を基に, F P ガスが燃焼度に対して直線的に増加したと仮定し て He の熱伝導率を修正した。また,ペレットの焼しまりによるギャップへの影響 を Marlowe の焼しまりモデル で修正した。

3. ペレットの変形解析

燃料挙動解析コード "FEAST"を用いてUO2 ペレットの変形解析を行い、以下の

-63-

関係を調べた。

- (1) 出力上昇に伴ってペレットがどのように割れるか、すなわち出力と割れパターンとの関係,
- (2) 割れによってペレットのみかけの直径がどの程度増大するか、すなわち割れパターンとリロケーションとの関係。

本節では解析方法と解析条件について述べる。

3.1 解析方法

FEASTコードは,複数個の連続体の接触問題と非接触問題を取扱う二次元有限 要素法(3接点要素)プログラムに,ペレットおよび被覆管の物性値とそれらの特 性を記述する半経験的モデルとを結合したものである。解析コードの特徴を表4.2 に示す。上記(1)に関する出力と割れパターン解析は,ペレット軸方向中央部の横断 面で行った。

解析対象	燃料棒の変形挙動
解析手法	軸対象有限要素法
規模	三角形要素で800要素
取扱える	接触問題,熱弾塑性クリープ変形
現象	ペレット割れ,ホットプレス
内蔵する	弾性定数,線膨張係数,クリープ速度
物性值	応カーひずみ曲線,照射成長速度

表4.2 プログラムの主な特徴

割れパターン解析に用いた有限要素モデルの一例を図 4.2 に示す。割れパターン 解析モデルは,基本的には CYGROコード<sup>22</sup>で採用されているモデルと同様である。 本来ペレットの割れは三次元的に発生するものであるが,このモデルでは要素内の 引張応力が UO<sub>2</sub> ペレットの破壊強度を越えると割れが発生し,応力が圧縮側に変 わると直ちに割れがゆ着すると仮定している。割れた部分の要素は下記のように応 カーひずみマトリックスを変換することによって行う。

割れのない要素の応力-ひずみマトリックス;

$$\{\varepsilon\} = \frac{1}{E} \begin{bmatrix} 1 & -\nu & -\nu & 0 \\ -\nu & 1 & -\nu & 0 \\ -\nu & -\nu & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2(1+\nu) \end{bmatrix} \{\sigma\} \quad \dots \dots \dots \quad (4-5)$$

割れを生じた要素の応力ーひずみマトリックス;

$$\{\varepsilon\} = \frac{1}{E} \begin{bmatrix} C_{r} & -\nu & -\nu & 0 \\ -\nu & C_{\theta} & -\nu & 0 \\ -\nu & -\nu & C_{z} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2 C_{rz} (1+z) \end{bmatrix} \{\sigma\} \dots (4-6)$$

ここで、 $C_r$ 、 $C_{\theta}$ 、 $C_z$ 、 $C_{rz}$ :任意に指定された定数 である。

(4-5), (4-6)式からわかるように, この割れモデルはある部分の応 力  $\sigma$ が UO<sub>2</sub> の破壊応力  $\sigma_f$  に対して  $\sigma \ge \sigma_f$  になると, その部分のひずみ  $\varepsilon \varepsilon \varepsilon =$ C · ( $\sigma / E$ )のように上述の定数Cを用いて大幅に増大させることによって割れ を表現するものである。なお割れた後のその部分の応力は,  $\sigma = \sigma_f$  としている。





## 図4.2 割れパターン解析有限要素モデルの一例

上記(2)に関する割れによるペレットの直径増加, すなわちリロケーションの量は ペレットの中央部横断面解析で得られた割れ片の半径方向せり出し量に, 軸方向の そり返り変形解析で得られた割れペレットの端面部での変形量を加えることによっ て求めた。すなわち, この量は割れたペレットの解析上の最大直径を与えることに なる。割れたペレットの軸方向そり返り変形は, ペレット片を1個の梁とみなす梁 モデル によって求めた。すなわち, 座標を図 4.3 のように設定することにより半 径方向温度分布に起因する割れたペレットのそり返り変形量は次式で与えられる。

但し、Tc,Ts:ペレットの中心,表面温度



図4.3 割れたペレット片の熱変形計算モデル
# 4.3 解析条件

解析はBWR7×7型燃料棒のUO2ペレットを対象とした。出力をステップ状 に少しづつ上昇させ、ペレットの割れが発生するごとにペレットの有限要素モデル を新しい割れパターンどおりに組替えた後、次の出力ステップへ解析を進めた。図 4.4 および図4.5 に、それぞれ8片、12片に割れた場合のペレット有限要素モデ ルを示す。このような方法で最高400W/cmの出力まで解析した。なお、同一出 カレベルで2種類以上の割れパターンが取り得る場合には代表的なパターンを適宜 選択した。



図 4.4 割れパターン解析の有限要素モデル (8片に割れたペレットの場合)





UO2焼結体の破壊強度は,脆性-延性遷移温度以下では温度に対してほぼ一定 24 である。この遷移温度は1200~1400℃の範囲にある。一方,本解析のベレ ット最高温度は約1200℃である。したがって,クリーブを無視すれば弾性解析 でペレット割れをかなり正確に予測できると考えられる。UO2の脆性領域の破壊 強度は,微細組織に影響されるが大体80~150MPaである。一般に二次元 平面解析で得られる応力は三次元解析に比べ低くなる。そこで,破壊強度の値とし て,低めの値(80MPa)を採用した。また,上記の破壊強度は単軸引張強さで あるから,二軸応力下での破壊条件を設定する必要がある。鋭いき裂を内在する脆 性材が二軸応力下で破壊する場合の破壊条件は,Griffithの理論から次のように 与えられる。

**ここで, σ**f : 破壊強度

 $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$ : 主応力 ( $\sigma_1 \geq \sigma_2$ )

である。

図4.6に, (4-8)式の破壊条件を示す。また, 解析対象としたUO2 ペレットの仕様出力, 温度条件および主な物性値を表4.3に示す。



図4.6 2軸応力下のUO2破壊条件

Pellet spec.			
Diameter	(mm)	12.4	
Length	(mm)	21.0	
Density	(%TD)	95	
End form			
Power & temp. cond.			
Max. power	(W/cm)	400	
Max. center temp.	(°C)	1250	
UO <sub>2</sub> properties			
Fracture strength	(MPa)	80	
Poisson's ratio		0.32	
Young's modulus	(MPa) E	$E = 2.26 \times 10^5 (1 - 1.131 \times 10^{-4})$	Г)(1—2.62P)
Thermal expansion	(°C <sup>-1</sup> ) <i>c</i>	$\alpha = -4.972 \times 10^{-4} + 7.107 \times 10^{-4} + 1.140 \times 10^{-13} \text{T}^3$	<sup>−6</sup> T+2.581×10 <sup>−9</sup> T <sup>2</sup>
		· · ·	

(但し,P:Fractional porosity, T:Temperature (°C))

# 結果および検討

4.1 出力上昇時のギャップ変化

HBWRで照射した燃料棒,A1(初期ギャップ;400µm),A2(同; 300µm),A3(同;200µm)の第1回出力上昇時におけるギャップの変 化を,それぞれ図4.7,図4.8,図4.9に示す。出力に対するギャップの変化は, いずれの燃料棒においても類似した傾向を示している。すなわち,ギャップの変化 は3段階の減少に特徴づけられる。第1段階の緩い減少,第2段階の急激な減少, 第3段階の指数関数的減少である。第1段階の緩い減少,第2段階の急激な減少, 第3段階の指数関数的減少である。第1段階の減少は,中実円柱ベレットと被覆管 の熱膨張差から計算される減少率と一致することから,この部分はベレットが中実 円柱形状を保ったまま熱膨張する領域である。第2段階の急激な減少が起こる出力 は,初期ギャップの大きさに依らずいずれも約60W/mである。この出力は, 図1.3で示したソフトPCI開始点,Bに良く対応している。このことから200 ~400µmのギャップ範囲では、ベレットはギャップに依存せず約60W/mで 割れ,同時に急激なリロケーションが起こり、その結果ベレット片の一部が局所的 に被覆管とソフトPCIを起こし始めるものと推定される。以下、この割れと同時 に発生するリロケーションをペレットジャンプ (pellet jump) と呼ぶことにす る。ペレットジャンプによるギャップの減少量,すなわちペレットジャンプ量は, 図4.7~図4.9から,ギャップにほとんど依存せず約50µmであることがわかる。 第3段階のソフトPCI領域におけるギャップの指数関数的減少挙動については 4.4項で詳しく検討する。



図 4.7 出力上昇時のギャップ変化(A1 燃料棒,初期ギャップ:400 µm)



図4.8 出力上昇時のギャップ変化(A2燃料棒,初期ギャップ:300 µm)



(A3燃料棒,初期ギャップ:200µm)

4.2 ペレットの割れパターン

図4.10は、田力上昇に伴うベレット内の周方向応力( $\sigma_{\theta}$ )の半径方向分布の 変化を、FEASTコードによって解析した結果の一例である。対象とした燃料棒は、 前項の照射燃料棒と同じ7×7型燃料棒である。田力50W/cmにおける $\sigma_{\theta}$ の半 径方向分布は、中心部(圧縮応力)から外周部(引張応力)かけてなだらかな連続 分布である。しかし、100W/cm以上の田力では中心から約¾~场のところで分 布曲線に屈曲点が認められ、その点より外周領域で $\sigma_{\theta}$ が一定になる。これは31 項で述べたように、この領域で割れが発生するので、 $\sigma_{\theta} = \sigma_{f}$ (破壊応力)として いるためである。この割れ発生田力は、HBWR照射燃料棒で観察されたベレット の割れ発生田力と大体一致している。図中の点線は、割れが発生しないと仮定した 場合の400W/cmにおける $\sigma_{\theta}$ の分布を示したものであるが外周部で $\sigma_{f}$ をはる かに超える周方向応力になってしまうことがわかる。図4.11、図4.12に、割れ パターン解析の一例としてベレット横断面の応力分布を示す。実線が引張応力、破 線が圧縮応力である。

-74-



図4.10 ペレットの周方向応力分布





(b)

図4.11 ペレット横断面内の応力分布(1)







: compression

図4.12 ペレット横断面内の応力分布(2)

実際の解析は第2節で述べたように、割れが発生するごとに割れパターンを組替え て順次出力上昇させる方式で行ったが、ここでは割れパターンの変化を簡単に説明 するため、全ての割れパターンについて400W/cmにおける応力分布を示した。 これらの図によれば割れの進展は次のようになる。前述したようにペレットが中実 円柱体(剛体)のままではペレット外周部の引張応力(σ)は、UO2 破壊強度

( $\sigma_f$ )の10倍以上になる(図4.11(a))。したがって,まずベレット側面に存在した気孔や微小クラックを初期クラックとして破壊が開始されベレットは2分割される(同,(b))。しかし,この状態でもベレット外周部のσは $\sigma_f$ に比べまだ3倍以上高いため、ベレットは更に半分に割れて4分割となる(図4.12(c))。4分割されたベレット片では,破面側中間部と外周部でいずれも $\sigma > \sigma_f$ となっている。したがって,割れがこれらの一方から,または同時に発生する可能性がある。どちらになるかは初期クラックに関連した表面状態に依存するが,破面側中間部の $\sigma$ が外周部に比べてやや高いこと,破面側の方が割れを誘起しやすい表面状態であることを考慮して,まず中間部から割れが発生するとした(同,(d))。このように8分割されたベレット片の中で,外側の破片の外周部では依然として $\sigma > \sigma_f$ となっているためこの部分に割れが発生する。また内側の破片の外周部には、 $\sigma_f$ 以下であるがかなり高い $\sigma$ となる領域があり,前述と同様な理由で最終的にはこの部分からも割れが発生すると予想される。以上のような出力と割れ、 $(\sigma - \nu)$ の関係をまとめて図4.13に示す。





-78-

この図から次の2点がわかる。

(1) 出力が約60W/cmに達するとペレットに割れが発生する

(2) ペレットの割れ数(割れ片の数)は出力に対しほぼ直線的に増加する(同図点線)

なお、本解析では出力上昇時の熱衝撃の影響を考慮していない。熱衝撃条件下では 割れ発生出力が低下する可能性がある。また、解析上の最大割れ数は400W/cm において16個であるが、実際の燃料棒では熱衝撃効果、PCIによる拘束力、ペ レットの表面状態など種々の要因により増加すると考えられる。図4.14は、炉外 PCI模擬実験(第6章詳述)で得られた出力とペレットの割れ数の関係である。



ペレットの割れ数は出力に対してほぼ直線的に増加する傾向がみられ,前述の解析 結果を裏付けている。なお,同一出力レベルでの割れ数は,図4.13に示した解析 結果より炉外実験の方が多くなっている。この主原因は,図5.6に示すように同一 出力でも中心部のみ加熱される炉外実験のペレットの方が,全体で発熱する通常ペ レットに比べ中心部と外周部との温度差は大きく,それだけ熱応力的に厳しくなる ためである。

#### 4.3 リロケーション挙動

図4.15,図4.16は、割れによってペレットのみかけの直径がどの程度大きく なるか, すなわちリロケーションの大きさを解析した結果の一例である。前の4.2 項と同様に説明を簡単にするため、ここでも出力一定(400W/cm)条件の下で 割れパターンとリロケーションとの関係を示した。点線が出力零におけるペレット またはペレット片の形状,実線が400W/cmにおける形状で,代表的割れパター ンごとに図4.15(b)から図4.16(d)まで示してある。割れによる半径方向せり出し 量は、図4.15(a)のように中実円柱体のまま400W/mまで熱膨張するとした時 の熱膨張量を1とし、これに対する相対値で示している。図4.15(b)は、中心を通 るクラックによって4個の破片に割れた場合である。(a)に示した割れの無い場合に 比べ、ペレット片の外径のせり出し量はクラックークラック中間部で1.22、クラ ック開口部で1.44となっている。(c)は中心を通る2本のクラックとペレット中間 部の周方向クラックにより8個の破片に割れた場合である。この場合ペレット片の 外径は、クラックークラック中間部で1.24、クラック開口部で1.50増大する。 (d)は合計12個の割れ片に破砕した場合を示している。この割れパターンになると, 外径は中心を通るクラック - クラック中間部で1.39, クラック開口部で1.57倍 まで大きくなる。



図4.15 ペレットの割れによる直径増加(1)

- 8 1 -



(c)



図4.16 ペレット割れによる直径増加(2)

以上述べた,ペレットの割れ数とみかけ半径との関係をまとめたものが図4.17 である。図に示すように、7×7型燃料ペレットの400W/cmにおける半径方向 熱膨張量は約45μmである。割れが発生すると,ペレット外周部の曲率半径がも との半径より大きくなり、ペレットのみかけ直径が増加する。例えばペレットが半 分に割れると、ペレット半径は最大63μmになる。図4.17から、割れによるペ レットのみかけ直径は,割れ数に対してほぼ直線的に増加することがわかる。一方 ペレットの割れ数は,図4.13,図4.14で示したように,出力に対して直線的に 増加する。したがって、ペレットの直径は出力とほぼ直線関係に増加するはずであるが実際 にはこれに熱膨張が重畳するため、結局ペレットの直径は出力に対して指数関数的 に増加することになる。一方,ペレットは図1.1に示したように鼓状にそり返り変 形する。このそり返り変形は,ペレット温度すなわち出力に比例して増大する。ペ レット端部ではこのそり返り変形と前述の割れによる直径増加が重畳するから、こ の部分で最大の直径増加が生ずる。出力上昇に伴うペレット端部の直径増加,すな わち最大リロケーションを解析した結果が図4.18である。図において, 点線はペ レットが割れないと仮定したときの直径増加である。一点鎖線は,図4.15~図4. 17の割れによるベレットの直径増加(2×4R。)を示している。 また2×4R。は, そり返り変形によるペレット端部のせり出し量である。

図から約60W/mの出力でペレットに割れが発生すること、割れと同時に急激 なリロケーションが起こること、その後は出力の上昇とともにペレット直径が指数 関数的に増加することがわかる。割れ発生と同時に起こる急激なリロケーションが HBWR照射燃料棒で観察されたペレットジャンプの正体と考えられる。本解析に よればペレットジャンプの大きさは、図に示すように約40µmである。この値お よび割れ発生出力(約60W/cm)は、ともにHBWR照射実験で得られたペレッ トの割れ出力およびペレットジャンプの大きさと良く一致している。本来、ペレッ トジャンプの大きさは、出力上昇速度(熱衝撃の厳しさ)やペレットの寸法に依存 すると考えられる。しかし解析によると、出力上昇速度が約3W/cm/min、ペレ ットの直径Dと長さLが、D=10~13mm、L/D=0.7~2.0の範囲にある 一般的なBWR燃料条件では、ペレットジャンプの大きさ $4D_j$ (µm)は近似的に 下式で表わされる。

 $\Delta D_{j} (\mu m) = 3.6 D (mm)$  ..... (4-9)



- 8 4 -

 $2 \times \Delta R_a$  $2 \times \Delta R_{c}$ 400 After deformation Before deformation (Original) Original pellet 300 Rod power (W/cm) ±∆ ∓Ra × Before deformation (Original) 200 ñ After deformation × Δ́R<sub>c</sub> X 100 N 5 200 300 100 C

図4.18 出力上昇に伴う割れたペレットの直径増加

Diametral increase (µm)

-85-

本解析で得られたペレットジャンプ後の指数関数的なペレット直径の増加は,一 見HBWR照射燃料棒で観測されたペレットジャンプ後のギャップの減少を説明し ているように思われる。しかし,実際の燃料ペレットの割れは,本解析のような理 想的な幾何学形態とかなり異なる場合が多い。したがって,このような理想的割れ モデルをそのまま導入するのは危険性がある。そこでこの部分の変形挙動について は,次項で述べるように別の観点から検討を行うことにする。

4.4 ギャップ閉塞モデルとその検証

前節の燃料棒照射実験およびペレットの変形解析から出力上昇時のリロケーション挙動が明らかになった。これらの知見に基づきギャップ閉塞モデルを作成した。 図4.19にギャップ閉塞モデルの概念を示す。ギャップは領域I~Nで表わされる 特徴的な4種類のペレット熱変形を経て減少する。

(領域I)

ペレットと被覆管の熱膨張差によってギャップが減少してゆく区間で、ペレットは中実円柱体形状を保ったまま変形する。

(領域Ⅱ)

ペレットの割れと,ペレットジャンプによる急激なギャップの減少が起こる領域 である。

図4.20は、燃料棒の初期ギャップを200~400  $\mu$ mの範囲でパラメータと し、ベレットに生ずる最大引張応力を燃料挙動解析コード(FEAST)で求めたも のである。UO2 ベレットの  $\sigma_f \approx 80 \sim 150$  MPa の範囲にとると、ベレッ トの最大引張応力  $\sigma_{max}$   $\delta \sigma_{max} > \sigma_f$  となる最小出力は初期ギャップにほとんど影響され ずに約60~90W/cmである。特にBWR燃料棒のUO2ベレットは密度が95%TD で、 $\sigma_f$  が80~100MPa であることから、一般的なBWR燃料では出力が 60W/cm付近でペレット割れが発生すると考えられる。割れと同時にペレットジ ャンプが起こりギャップが減少する。一般的な軽水炉燃料の設計仕様の場合、この ギャップ減少量は(4-9)式から大体40~60 $\mu$ mである。割れたペレット片 群が被覆管内で自立しているとは考えられず、実際には変形の大きいペレット端 面部の一部がペレットジャンプの時点で被覆管と接触し、ソフトPCIが発生する であろう。しかし、部分的に弱いPCIは燃料棒のPCI/SCCの点ではほとん

-86-

ど問題にならない。むしろ実効的なギャップ減少は,ギャップコンダクタンスな ど燃料棒の熱的性能に強い影響を与える。したがって,燃料性能の点からは,この 領域で重要なのは局部的なペレット片の挙動ではなく,ペレットの平均的リロケー ション挙動である。そしてこのリロケーションの大きさは(4-9)式に示したペ レットジャンプから求めることができる。



図4.19 出力上昇時のギャップ閉塞モデル(概念図)

- 87-



図4.20 ペレットに生じる最大応力

(領域Ⅲ)

この領域は、ハードPCI開始点に至るまでのソフトPCI領域である。この領 域は出力とともにペレットの割れが進行し、割れと熱膨張によってペレットのみか け直径が指数関数的に増加するが、被覆管の内側で割れたペレットの破片が相互に 動き得る空隙をまだ有している領域、と特徴づけられる。言いかえれば、不規則に 割れたペレットの小片群が被覆管からの反作用により相互に滑りつつ位置を変え、 次第に被覆管内部の空隙を埋め、やがて固着してゆく過程である。このようなペレ ット片群の挙動は、容器内で圧縮される粒状物質の充填挙動に良く類似していると 考えられる。粒状物質が圧縮される場合の圧縮荷重Wと充填率ρとの関係は、充填 23 23

とこで, A, B : 定 数

 $1-\rho=\beta$ : 圧縮体の空隙率

である。

ペレットー被覆管体系では、βは被覆管横断面内のペレットに占有されていない 空間の割合であるから,

$$\beta = (2 \text{ G D}_{c} - \text{G}^{2}) / D_{c}^{2}$$
 .....  $(4 - 1 1)$ 

で与えられる。

ここで, D c: 被覆管の内径

G : 実効ギャップ

である。

一般的に、G $\ll$ D<sub>c</sub>だから(4-11)式は近似的に

 $\beta = 2 \text{ G / D}_{c}$  (4-12)

となる。すなわち, (4-10)式の左辺分母は実効ギャップ(G)によって置き かえられることになる。出力上昇中にペレット片群に発生する圧縮荷重は,ペレッ ト片各々の熱膨張に起因するものである。ペレットの熱膨張は温度に対して,また 30,31 ペレット温度は燃料棒出力に対して,それぞれ直線関係がある。 このことから, (4-10)式の荷重Wは,燃料棒の出力によって代表させることができる。 すなわち,ソフトPCI領域のギャップ減少挙動は次式で与えられる。

 $\mathcal{L}_{n} \left( \frac{1}{G} \right) = m + n \cdot P$  ..... (4-13)

ここで, m, n:定 数

P :燃料棒の出力(W/cm)

である。

図4.7~図4.9に示したHBWR照射燃料棒のギャップデータから,ソフトPCI 領域でデータを最小二乗法でフィッティングし,(4-13)式の定数m, nを求 めた。その結果,これらの定数は次のように表わされることがわかった。

 $m = -\ell_{n} (G_{0} - 3.6 D)$  n = 0.0039 (4-14)

ただし、 $G_0$ : 初期ギャップ ( $\mu$ m)

である。

したがって, (4-13), (4-14)式から, ソフト PC I 領域におけるギ ャップは次式のように与えられる。

G ( $\mu$ m) = (G<sub>0</sub> -  $\Delta$ D<sub>j</sub>) exp { -0.0039 (P-60) } .... (4-15)

図 4.7 ~図4.9 のソフトPCI領域の実線は、(4-15)式による計算値を示 したものである。また、図 4.2 1 は、第6章で述べる他のHBWR照射燃料棒(基 本仕様;BWR8×8型燃料棒)の出力上昇時のギャップデータと(4-15)式 による計算値を比較したものである。これらの結果から、(4-15)式はソフト PCI領域のギャップ挙動をよく表わしていることがわかる。

-90-



図4.21 出力上昇時のギャップ変化 計算値と実験値との比較

#### 4.5 ギャップに及ぼす燃焼度の影響

前項まで照射初期の出力上昇時におけるギャップ挙動を検討したが、この 場合は、ギャップはペレットリロケーションに依存していた。燃焼が進むと、 ペレットにはこの他に焼しまり(densification)、スエリング、クリープが、ま た被覆管にはスエリング、外圧クリープなどが起こるから、ギャップはこれらの影 響を直接、あるいは間接に受けることになる。以下、ギャップに及ぼす燃焼度の影 響を検討する。

ある燃焼度の燃料棒が低出力から高出力へ出力上昇する場合を考える。この場合, 燃焼度の影響はペレットの割れに関するものと,そうでないものとの2つに分類で きる。被覆管およびペレットのクリープやスエリング,それにペレットの焼しまり などの現象は、ペレットの割れに直接関与しないので,ペレットジャンプやソフト PCI領域のペレット片の挙動には影響を与えないと考えられる。しかし,これら の現象はペレット直径と被覆管内径に直接影響を与えるから,これらは出力上昇直 前の燃料棒のギャップ,すなわち初期ギャップに関与する因子となる。したがって, (4-13)式の定数mを次のように修正した。

ここで、Kはスエリング( $4D_s$ )、焼しまり( $4D_d$ )などペレットの割れに直接 関与しない現象によるペレット直径または被覆管内径変位量の合計( $K = 4D_s + 4D_d + \dots$ )である。

燃焼度の増加とともに、ペレットの割れが増加するという定性的な関係は、燃料 棒の照射後試験データなどから知られている。これは、(1) FPの蓄積や照射による 結晶組織的欠陥の増大,(2) 出力サイクル運転時の熱衝撃によるき裂の発生と進展, に起因すると考えられる。したがって、ペレットの割れに及ぼす燃焼度の影響は、 厳密にはペレットの微細組織や燃料棒の出力履歴に依存するので単純な数式では表 わせない。しかし、前述の照射後試験データによれば、ペレットの割れは燃焼度に 対し、定性的には初期に急増しやがて飽和する傾向がある。ペレットのリロケーシ ョンは、割れ数に比例するので燃焼度の進行にともなうリロケーションの変化は次 のような指数関数で表わせると考えられる。 ことで、f : 燃焼度によるリロケーションによる加速係数
 B : 燃焼度(GWD/T)

R<sub>B</sub>, R<sub>E</sub>: 定 数

である。

図 4.2 2 は H B W R 照射燃料棒, A 1, A 2, A 3 の 直径 増加量(リロケーショ ンの大きさ)を2.2 項で述べた解析方法で求め,これを燃焼度に対してブロットし たものである。ベレットのリロケーションは燃焼度に対し初期に急増し,やがて飽 和する傾向が認められ(4-17)式の妥当性を裏付けている。(4-17)式の 定数 R  $_{\rm B}$  は,直径 増加の飽和値,すなわちリロケーションが最終的にどの程度まで 増加するかを示す値である。図 4.2 2 のように燃焼度 B が B = 0 GWD/T時の直径 増加量を a,直径 増加が飽和する B  $\geq$  1 0 GWD/Tのときの直径 増加量を b とすれ ば, R  $_{\rm E}$  は R  $_{\rm E}$  = b / a で与えられる。表 4.4 は, A 1, A 2, A 3 の各燃料棒に ついて b / aを整理したものである。この表から R  $_{\rm E}$  は M  $_{\rm F}$  + ップに依 らず, R  $_{\rm E}$  = 1.4 1 で与えられることがわかる。また、定数 R  $_{\rm B}$  は J ロケーション が飽和する前の燃焼度効果を表わす定数である。図 4.2 2 の低い燃焼度領域におけ るデータのフィッティングによって R  $_{\rm B}$  を求めたところ,これも R  $_{\rm E}$  と同様に初期 ギャップに依存せず R  $_{\rm B}$ = 0.95 で与えられることがわかった。以上から,燃焼度 を考慮したソフト P C I 領域のギャップ変化G(B)( $\mu$ m)は次式で表わされる。

G (B) = { G<sub>0</sub> - ( $\Delta D_i$  +K) } { 0.59 exp (-0.0039 (P-60))

 $+0.41 \exp(0.0039(P-60)+0.95B)$  ...... (4-19)

-93-



図4.22 割れたペレットの直径増加(リロケーション)と
 燃焼度(燃料棒の線出力密度:300W/cm)

Rod Initial gap No. Go (µm)	Pellet diametral increase (relocation)		h / a	
	at 0 GWD/T a(µm)	in≥10 GWD/T b (μm) <sup>⊛</sup>	b/a	
A1	400	263	375	1.43
D7	280	190	270	1.42
A3	200	140	194	1.39
⊛Linear heat rate:300W/cm			Ava.	1 41

表4.4 割れたペレットの直径増加(リロケーション)

に及ぼす燃焼度の影響

# 5. 結 言

燃料棒の出力上昇開始からハードPCI開始直前までの、ペレットの変形挙動を燃料 挙動予測コードを用いたペレットの熱変形解析と、計装付燃料棒のHBWR照射実験に より明らかにした。そしてこれらの知見に基づき出力上昇時のギャップ変化を記述する ギャップ閉塞モデルを作成した。

典型的なBWR燃料棒の設計仕様と出力条件の範囲内のペレット変形挙動に関連して 以下のことがわかった。

(1) 出力上昇開始からハードPCI開始に至るペレット変形挙動は,次のような連続した3領域に分類できる。

第1領域:熱膨張による直径増加

- 第2領域:割れの発生と、急激なリロケーション(ペレットジャンプ)
- 第3領域:被覆管と部分的に弱く接触した状態での、ペレット破片の熱膨張、すべり、 割れに起因するリロケーション
- (2) 第2領域のペレットの割れは、ギャップに依らず約60W/cmの出力で発生する。
   ペレットジャンプ量 4D<sub>j</sub> (µm)は、ペレットの直径をD(mm)とすれば、4D<sub>j</sub> = 3.6Dで与えられる。

(3) 第3領域のリロケーションによるギャップの変化は、実効ギャップを $G(\mu m)$ , 出力をP(W/cm),初期ギャップを $G_0(\mu m)$ とすれば下式で与えられる。

 $G = (G_0 - \Delta D_i) \exp(-0.0039 (P-60))$ 

(4) 燃焼度の影響を考慮した実効ギャップG(B)(µm)は次式で表わせる。

G (B) = { G<sub>0</sub> - ( $\Delta D_{j}$  +K) } { 0.59 exp (-0.0039 (P-60) )

 $+0.41 \exp(0.0039 (P-60)+0.95B)$ 

ここで,Bは燃焼度(GWD/T),Kはクリープやスエリングのようにペレットの割れに直接関与しない現象によるギャップの増加量または減少量である。

(5) 上記,ギャップ閉塞モデルは照射中の燃料棒のギャップ挙動を良く記述するもので あることがわかった。

## 6. 参考文献

- (1) M. Oguma,: Integrirty Degradation of UO<sub>2</sub> Pellets Subjected to Thermal Shock; J. Nucl. Mater., to be published.
- (2) Y. Mishima et al.: Trans. Amer. Nuc. Soc., 20, p222(1975)
- (3) B.Brzoska et al.: Trans. 5th SMIRT, D2/1 (1979)
- (4) D.D. Lanning : Nucl. Technol., 56 1565 (1982)
- (5) H.Hlbel and J.L.Jimenez: Trans. 4th SMIRT. D1/6 (1977)
- (6) A.D. Appelhans et al.: NUREG/CR-1425 (1980)
- (7) A.D. Appelhans and S.J. Dagbjartsson: Trans. 6th SMIRT, C1/5 (1981)
- (8) M. P. Bohm: NUREG-1028 (1977)
- (9) Entropy Limited: EPRI NP-2291, 1 (1982)
- 00 K. Ito et al.: Res Mechanics, 2, p109 (1981)
- 1) D.S. Dutt et al.: (Trans. Amer. Nuc. Soc., 17, p175 (1973)

-96-

- 42 L.A. Walton and D.L. Husser: IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling, Preston, UK (1982)
- (13) R.E.Williford and D.D.Lanning: ibib, Preston, UK (1982)
- (4) R.E.Williford et al.: Nucl. Technol., 56, p340 (1982)
- (5) R.E.Williford et al.: Trans. 6th SMIRT, C1/4 (1981)
- M. Oguma and T.Hosokawa: Enlarged Halden Program Group Meeting Leon, Norway (1978)
- M S.Shimada, and M. Oguma: Enlarged Halden Program GroupMeeting, Hnako, Norway (1979)
- 48 A.M. Ross and R.L. Staute: CRFD-1075/AECL-1552 (1962)
- (19 M.O. Marlowe: NEDO-12440 (1973)
- 20 M.O. Marlowe: Trans. Amer. Soc., 17, p166 (1973)
- (2) K.Ito, M.Ishida and M.Oguma : "FEAST", a Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-Mechanical Fuel Rod Behavior ; Paper presented EHPG Meeting, Loen, 4th-9th June, 1978
- 22 E.Dumecombe et al.: CYGRO-3.A computer programme to determine temperature, stress and deformation in oxide fuel rods, WAPD-TM-961 (1970)
- 23 岩野: クラック入り燃料ペレットの熱変形:昭和49年日本原子力学会 H31(昭49-3)
  24 R.F. Canon et al.: J.Amer, Ceram. Soc., 54, p105 (1971)
  25 K.C. Radford: J. Nucl. Mater. 84, p222 (1979)
  26 M. Oguma: J. Nucl. Sci., Technol., 19 p1005 (1982)
  27 R.W. Davidze: Cambridge University Press. (1979)
  28 K. Chino et al.: Powder and Powder Metallurgy 29, p195 (1982)
- 29 H.F. Fishmeister et al.: Powder Metallurgy 4, p179
  (1978)

-97**-**

- © D.L. Hagrman and G.A. Reyman: NUREG/CR-0497 (1979)
- (3) M. Uchida and M. Ichikawa: Nucl. Technol. 51, p33 (1980)
- 82 小熊,細川:燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル;日本原子力 学会分科会(昭和53年)

# 第5章 ペレットー被覆管相互作用のもとでの

割れたペレットの挙動

## 1. 緒 言

燃料棒の出力上昇中に起こるUO2 ペレットの割れは,三次元的な不規則で複雑な現象であるからこれを解析的に取扱うことは難しい。このため現在開発されている大部分の燃料挙動解析コードでは,ペレットの割れを無視するかあるいは前章の図4.13で示し (1)~(4) たような幾何学的に単純化したモデルで代表している。割れを考慮した後者のベレット モデルの場合でも,出力上昇に伴い幾何学的に単純なクラックは互いに不整合を生じる ことなく再びもとの位置で閉じ合わされるから,ハードPCI発生時のペレットの力学 的取扱いは,結局割れのない中実円柱ペレットと同じ機械的性質を持つとすることが多 (5)(6) い。

図5.1 は狭ギャップ燃料棒のHBWR照射実験で測定された出力上昇に伴う燃料棒の 直径変化と,前述のペレットモデルを持つ燃料挙動解析コードで同じ燃料棒の直径変化 を解析した結果とを比較したものである。解析コードで計算されたハードPCI開始後 の燃料棒直径増加率(出力に対する直径増加の割合)は,実際の燃料棒が緩やかである のに対しかなり急な立上りをみせている。このような実測値と解析値との差異は,単純 な割れパターンに基づくUO2 ペレットの力学的取扱い,すなわちハードPCI発生後 のペレットは割れのないペレットと同じ機械的性質を持つとするモデルが妥当でないこ とを示唆している。第2,第4章で述べたように、ペレットは出力上昇の初期の段階で 割れ,ハードPCI開始前に既に多数の複雑な割れが生じている。更にこれらの破面は 平滑ではないのでハードPCI開始時のペレットは,割れ片の不整合な噛み合とそれに よる局所的な空隙を数多く有した状態になっている。このようなペレットは割れのない ペレットに比べると圧縮性に富み,変形に対する剛性が低いと推定される。そこで,こ のようなペレットを割れ片群から構成される1個の集合体とみなし,この集合体に固有 な機械的性質を付与することによってハードPCI領域の割れたペレットの力学的ふる まいを表現しようと試みた。

本章の研究は、このような仮説に基づき図1.3 "E"で示した、ハードPCI領域の ペレットのふるまいを表現する、"割れたペレットの機械的性質"を見い出すことを目 的に、燃料挙動解析コード(FEAST)によるハードPCI領域の燃料棒変形解析と模

-99-



# 2. 炉外PCI模擬実験

割れ片の集合体とみなした割れペレットの力学的ふるまいは,拘束力や自由空間の大小によって影響されると考えられる。そこで被覆管肉厚やギャップなど燃料棒の設計仕様とPCI挙動との関係を炉外PCI模擬実験で調べた。

PCI模擬実験は、短尺被覆管に中空ペレットを充填し、ペレット中空部に挿入した タングステンヒータを通電加熱することによりペレットを熱変形させ、PCIを再現し (8)(9) 被覆管の変形(直径増加、リッジ変形)を測定するものである。

### 2.1 供試燃料棒

実験に用いた供試燃料棒の基本構造を図 5.2 に示す。燃料棒は外径約14.5 mmの ジルカロイー2被覆管に内径 5.5 mmの中空UO2ペレットを装填し,その中心に直 径約5 mmのタングステンヒータを挿入した構造である。

被覆管の基本仕様は, BWR 7 × 7型燃料被覆管と同一(応力除去焼鈍処理材, (9) 肉厚約 0.9 5 mm)である。被覆管の両端には伸び検出器を固定するためのコネクタ ーを設け,更に銅電極を通すカラーをTIG溶接してある。中空UO2 ベレットは, 天然UO2 粉末を圧粉成形し,理論密度比9 3 ± 1 %に焼結したフラ ットペレット である。ペレットスタック長は約260mm,燃料棒全長は約450mmである。実験 中のタングステンヒータの酸化を防止するため,1気圧の2%H2-98%He混合 ガスを流通できるように銅電極部にはガス導入孔を設けている。両端の2段0リン グシールは,燃料棒の気密維持と同時に絶縁体としての役割りとヒータの熱膨張 を吸収する機能を持っている。



Pellet	Cladding	Heater
Mat. : UO2	Mat. : Zircaloy - 2	Mat. : Tungsten
0.D. : 12mm *	0. D. : 14 mm *	O. D. : 5.0 mm
I.D. : 5.5 mm	I. D. : 12 mm	
Length: 13 mm	Heat : S.R.	
Dens. : 95%TD	Treat.	
	ж Ш Ж	perimental parameter

図5.2 P01模擬実験用燃料棒

実験パラメータは,表5.1に示すようにギャップおよび被覆管肉厚である。ギャ ップはペレットの外径を調整して変化させた。また薄肉被覆管は,外面を沸硝酸混 合液中で化学研磨して製作した。肉厚の精度は標準管とほぼ同程度の約±0.01mm であった。

gap ( بس) thickness( mm)	55	100	150
0.5	0	0	0
0.76	0		
0.95	0		

表5.1 供試燃料棒のギャップと被覆管肉厚

2.2 PCI模擬実験装置

PCI模擬実験装置の全体構成を図5.3に示す。装置は供試燃料棒,直径測定器, 伸び検出器から成る測定系,出力制御系,冷却系,データ表示記録系から構成され ている。

図 5.4 に燃料棒および直径測定器の模式図を示す。この測定器は、円筒形のベー スに6個の梃子式の渦電流式変位計を取付け120°の方位間隔で3方向から直径 を測定する構造で、その測定精度は土2µmである。実験中はこの直径測定器が燃 料棒に沿って上下に移動し、燃料棒の直径とプロファイルを測定する。軸方向1mm間 隔で測定された直径データは、紙テープに穿孔され、軸方向プロファイルは連続的 にアナログ記録される。直径測定器の駆動距離は約180mm、駆動速度は約60mm / minであるので一方走査に約3分間を要する。タングステンヒータの出力は、あ らかじめ設定された出力パターンプログラムに沿って自動制御される。

-103-


図5.3 炉外PCI模撥実験装置(構成図)



図5.4 供試燃料棒および直径測定器の模式図

図5.5に代表的な出力パターンを示す。直径測定器が約3分間の走査時間を要す るため、出力パターンは125W/cm上昇の後、測定のため5分間保持するという ステップ状パターンとした。最高到達出力300W/cmで30分間保持した後、出 力を25W/cm下げ5分間保持するというステップで下降させた。



図5.5 出力モードと変形測定点

2.3 燃料棒の温度分布

中心加熱中の燃料棒の半径方向温度分布は,タングステンヒータの出力と冷却水 温度から求めた。100W/cm以上では被覆管外表面で沸騰が起こるので被覆管外 表面温度は,垂直円管の沸騰熱伝達を与えるJakobの式 を用いて計算した。すな わち,

$$\Delta T = 0.25 a^{-0.68} b \circ q^{0.32} \qquad \dots \qquad (5-1)$$

ここで、**Δ**T : 被覆管表面と冷却水との温度差(℃)

q : 熱流束(kcal/m<sup>2</sup>h)

a, b : 液体の蒸発潜熱, 仕事当量などから決まる定数

である。

計算結果を表5.2 に示す。

表 5.2 供試燃料棒の出力と被覆管表面温度

Linear heat rate (W/cm)	100	150	200	250	300
Cladding surface temperature (*c)	113	115	116	117	118

ペレット表面と被覆管内面の温度差は, Ross and Stouteのギャップコンダク (1) タンスモデル で算出した。ペレットの半径方向温度分布は次式で与えられる。

 $\int_{\mathbf{T}\,\mathbf{0}}^{\mathbf{T}} \mathbf{K} \cdot \mathbf{d} \,\mathbf{T} = -\frac{\mathbf{Q}}{2\pi} \,\mathcal{L}_{\mathbf{n}} \left( \mathbf{r} / \mathbf{r}_{\mathbf{0}} \right) \quad \dots \qquad (5-2)$ 

とこで, r : ペレット中心からの距離(cm)

ro: ペレット外径(cm)

T : r 点 に おける 温 度 (℃)

T。: ペレット表面温度(℃)

Q : 燃料棒出力(W/cm)

K : UO2 ペレットの熱伝導率(W/Ccm<sup>2</sup>)

である。

このようにして求めた出力200W/mと300W/mにおけるペレット半径方向温度分布を,同一出力の実機燃料ペレットの半径方向温度分布と対比させて図 5.6に示す。実際の燃料ペレットの場合は,一定の発熱分布で自己発熱するため半 径方向温度分布は中心をピークとする放物線状となるのに対し,中心加熱ペレット (8) では中心から外面への指数関数的分布となる。

-107-



図 5.6 PCI模擬実験の中空ペレット温度分布と
 実機燃料ペレット温度分布の比較

# 3. 燃料棒のPCI解析

1.31

氟基氯学氏键的过去式。

ハード P C I 領域の割れたペレット, すなわち割れ片の集合体, がどのような機械的 性質を持つのかをモデル解析により検討した。しかし割れたペレットの機械的性質を理 論的に導出するのは困難なため, ここでは以下のような方法を用いた。

ベレット破片同志の不整合な嚙み合いによって生ずるペレット内部の空隙の増加は, (12) 気孔率の増加とみなせるから,ヤング率,ポアソン比などベレットの弾性定数は減少する (13) と考えられる。また,割れたペレットではペレット片の熱膨張が内部の空隙によって吸 収されるから,割れたペレットの実効的熱膨張率も割れのないペレットに比べ低くなる と考えられる。そこで,ペレットのキング率,ポアソン比,熱膨張率をパラメータとし て,前節の炉外PCI模擬実験の燃料棒直径増加やリッジ形状,高さを求め,これらの 値を実験データと比較することにより,燃料棒のハードPCI挙動を良く表現する実効 的物性値を見い出した。

解析に用いた燃料挙動解析コードは前章と同じコード(FEAST)である。割れのな いUO2ペレットの"標準"物性値として,表2.2に示したヤング率,ポアソン比,熱 膨張率の値を用いた。解析対象とした燃料棒は、図5.2および表5.1に示した炉外PCI 模擬実験用燃料棒である。出力条件は図5.5の出力パターンに基づいて設定した。冷却 水圧力は1気圧一定としたが,冷却水温度は零出力18℃(室温)から100W/cmの 100℃まで直線的に上昇し,100W/cm以上では100℃一定とした。この温度条 件は,100W/cm以上で沸騰を生じたという観察結果に基づいている。図5.7に解析 に用いた有限要素モデルを示す。

-109-

ココンマー 人き報





#### 4. 結果および検討

# 4.1 燃料棒のハードPCI挙動

図5.8は、炉外 PCI実験で得られた、出力250W/mにおける燃料棒の軸方 向直径ブロファイルを、試験前後のブロファイルと比較して示したものである。なお、 この燃料棒のギャップは55µm、被覆管肉厚は0.95mmである。試験前の燃料棒 には僅かな変形が見られる。これは、被覆管製造時の曲り、偏平などによるもので ある。250W/mで加熱中の燃料棒には、ベレットのそり返り変形に起因する明 瞭なリッジがベレット端面に対応した位置に観察される。そして、これらのリッジ は、試験終了後の燃料棒にも不明瞭ながら塑性変形として残されている。また、燃 料棒の直径に関しても試験前に比べ試験後は僅かに増加しており、試験中ベレット が被覆管と全面的 PCIを起こしていたことを示している。炉外実験の燃料棒と実 際の燃料棒とでは、図5.6に示したようにそれぞれベレットの温度分布が異なるか ら、同一出力に対する PCI変形の絶対値は一致しないが、炉外実験で得られた出 力上昇に伴うリッジ変形挙動は、照射実験などで観察される実際の燃料棒のそれと 良く一致している。このことから、中心加熱法による炉外 PCI実験は、実際の 燃料棒の PCI 挙動をかなり良く模擬していると言えよう。

図5.9 は、被覆管の肉厚が一定(0.95mm)で、ギャップが各々55、100、 150 µmと異なる燃料棒の出力300 W/cmにおける軸方向の直径増加量を、軸 方向プロファイルとして示したものである。縦軸の直径増加量は、被覆管の熱膨張 を含む値である。被覆管の熱膨張は、300 W/cmで約11µmであるから、これ を差し引いたものが PCIによる変位となる。狭ギャップ(50µm)燃料棒では、 図5.8 の加熱データと同様、ペレット端面部に対応した位置で明瞭なリッジが認め られる。しかし、ギャップが増大するに伴いリッジは次第に不明瞭になってくる。 ギャップが150µmになると、リッジの形成は不規則となり、燃料棒の直径も被 覆管の熱膨張から予測される直径と差異が少なくなる。部分的に直径測定値が大き く落込む個所がみられるが、これは試験前の燃料棒取扱い時に、ペレットーペレット 間に空隙ができていたためと考えられる。



図5.8 燃料棒の軸方向プロファイル



図5.9 燃料棒のプロファイル(出力:300W/cm)

図5.10は、これら燃料棒の出力上昇中における直径変化を示したものである。 なお、縦軸の値は燃料棒の軸方向約100mmの区間(ペレット約5個分)測定値を 平均したものである。図5.10から次のようなことがわかる。

- (1) ギャップに無関係に,出力が約30W/m付近(図中,A点)で燃料棒の外径 が被覆管の熱膨張より大きくなる。
- (2) ギャップに無関係に、燃料棒の外径がほぼ一定の値(図中、点線)に達すると ハード PC Iが発生する(同, B点)。

(3) ハード P C I 領域の燃料棒外径変化率はギャップが増大すると減少する。

上記(1)の現象は明らかにPCIによるものである。30W/cmという出力レベル は,図4.14に示したように、炉外PCI模擬実験燃料棒のベレット割れ出力に対 応している。このことから、第4章で述べたように、ベレットは割れと同時にリロ ケーション(ベレットジャンプ)し、被覆管とソフトPCIを開始することを示し ている。なか、本実験のベレット割れ出力、30W/cmは実際のUO2ペレット の割れ出力、約60W/cm、(第4章参照)に比べると低い。これは、図5.6に示 したように中心加熱ベレットの温度分布は、自己発熱ベレットに比べ同一出力でも、 最高温度、中心一表面温度差とも高いためである。(2)の現象は、用いた被覆管の材 質、寸法が全て同一であるから、一定のひずみに達するとハードPCIが発生する こと、言換えれば割れたベレットは一定の拘束力を受けると、見掛け上剛体のよう になって被覆管に強い反作用を及ぼすようになることを示唆している。これについ ては次章で詳しく検討する。(3)の現象は、破片の集合体である割れベレットの機械 的性質は自由空間(ギャップ)の大小に依存するであろうとの最初の仮定を裏付け ている。



図5.10 燃料棒の外径変化(中心加熱実験)

図5.11に被覆管の肉厚がそれぞれ0.5,0.76,0.95mmの燃料棒の出力上昇時における直径変化を示す。図から被覆管の肉厚が増加するにともない,ハード PCI領域の燃料棒直径変形が減少することがわかる。ハードPCIを起こしているペレットが被覆管から受ける拘束力は,およそ45~55MPaと推定される。 本炉外実験のペレットは約950℃の最高体積平均温度を短時間経験するだけなので,ペレットのクリーブは無視できる。したがって,もしペレットが割れていなければペレットの熱変形が被覆管の拘束力の大小によって影響を受けることはなく燃料棒のPCI変形も影響は受けないはずである。本実験でPCI変形が被覆管肉厚によって影響を受けたことは,ハードPCI領域の割れたペレットの剛性が低いことを示唆している。

図5.12は、ハードPCIを経験したPCI模擬実験燃料棒の試験後の横断面と 縦断面である。ペレットの横断面には太い半径方向クラックと細い不規則なクラッ クが多数観察される。また、縦断面も同様に縦方向、横方向に数多くのクラックが 見られる。このように、ペレットは多数の破片に割れた状態でハードPCIを起こ すものと考えられる。

4.2 ハードPCI挙動と割れたペレットの実効弾性モデル

図 5.13 は、UO<sub>2</sub> ベレットのヤング率(E)、およびポアソン比( $\nu$ )を、それ ぞれ E'=E~E/50、 $\nu' = \nu \sim \nu/10$ の範囲でパラメータとし、FEASTコード により燃料棒の直径増加とリッジ変形を解析した結果の一例である。この結果から、 Eあるいは  $\nu$  のいずれを減少させても燃料棒の直径増加量が減少するから、図5.1 に示したハードPCI領域における燃料棒直径変形の実測値と解析値の差を縮少で きると予想される。次に燃料棒のリッジ変形に対するEおよび  $\nu$  の応答性をみると、 図 5.13の E'/E = 0.05 あるいは E'/E=0.02で観察されるように、リッジの 形はEよりも  $\nu$ によって強い影響を受けることがわかる。そこで、先ずEを固定し  $\nu$ をパラメータとしてPCI模擬実験燃料棒のリッジ変形を解析し、実験データと 比較することにより最適な  $\nu$  (以下、これを $\nu$ 'モデルと言う)を求めた。





-117-



# Longitudinal section

Transversal section



図5.13 燃料棒の直径増加およびリッジ変形に及ぼす 実効ヤング率,ポアソン比の影響

図5.14はそのような方法で求めた  $\nu' (\nu' = 0.3\nu)$ を用いて,別の PCI 模擬 実験燃料棒(ギャップ:35  $\mu$  m,被覆管肉厚:0.95mm)のリッジを予測し、こ れを実測データと比較したものである。図の上段が燃料棒軸方向の直径プロファイ ルで、各々のリッジに対応して記号 a ~ kを付けてある。図の下段は a ~ kのリッ ジを一つにまとめて表わしたものである。また、実線は予測値である。実測データ は広くばらついている。これはペレットの不確定を割れ挙動に起因すると考えられ る。予測値は実測値のやや下方に位置しているが、ほぼリッジ形状を表現している と言えよう。

-119-

次に,上記で得た  $\nu'$ を固定し, Eと熱膨張率( $\alpha$ )の内の一方を交互に減 少させる方法で,出力と燃料棒の直径増加の関係を調べた。図5.15は,  $\alpha$ を  $\alpha' = \alpha/2$ とした場合(以下,  $\alpha'$ モデル),図5.16は,EをE'=E/35とした 場合(以下E'モデル)である。これらの結果から,出力に対する燃料棒の直径増加 率はE'モデル,  $\alpha'$ モデルのいずれにおいても緩やかにできることがわかる。しかし, 被覆管肉厚に対する燃料棒直径変形の応答性が両モデルで異なっている。

そこで,被覆管肉厚と燃料棒の直径増加の関係について,炉外PCI模擬実験の 実測値(図5.11)とE'モデルおよび a'モデルを用いた計算値(図5.15,図5.16) とを比較した。図5.17はその結果を示したもので,被覆管の肉厚が0.5mmの燃料 棒の出力250W/cmにおける直径増加量を1とし,被覆管肉厚増加による直径増 加の変化を相対値で表わしている。



図 5.1 4 リッジ形状の予測値と実測値の比較 ( v' モデル )

-120-



図5.15 実効熱膨張率と被覆管肉厚



図5.16 実効ヤング率と被覆管肉厚



# Cladding thickness (mm)

図5.17 被覆管肉厚の燃料棒直径変化に対する応答性, 実験値(炉外PCI模擬実験)と計算値(実 効弾性モデル)との比較

この図から被覆管肉厚が 0.5 ~ 0.9 5 mmの範囲にある燃料棒の直径変形は,  $\alpha'$ モデルでは表現できないのに対し, E'モデルは実験値に良く合っていることがわかる。この結果から,割れペレットの実効的な変形モデルとしては, E'モデルを採用するのが妥当と考えられる。

ところで,破片の集合体である割れたペレットの実効的なヤング率(E')は,被 覆管内の空隙(ギャップ)の大小に依存すると考えられる。そこで次のような方法 により E'のギャップ依存性を調べた。まず炉外実験データ(図5.10)および燃

-123-

(17) 料棒直径測定照射実験データ からハードPCI領域(出力が300~400W/ cmの領域)の単位出力あたりの直径ひずみ増加率とギャップとの関係を調べ,次式 を得た。

$$\frac{d \varepsilon}{d P} = 9.3 \times 10^{-5} e x p \{-4.8 \times (\frac{G_0}{D})\} \qquad \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots (5-3)$$

ここで、d  $\epsilon$ /dP:単位出力あたりの燃料棒直径ひずみの増加率(m/W)

Go : 初期ギャップ (µm)

D : 被覆管内径 (mm)

である。

次に、FEASTコードを用いて $\nu' \epsilon \nu' = 0.3 \nu$ と固定し、E'/Eをベラメータ にして出力300~400W/cmにおける燃料棒の直径変形解析を行い、E'/Eと d  $\epsilon$ /dPとの関係を求めた。図 5.18にその結果を示す。

図からE'/Eは次式のように与えられる。

(5-4)式に(5-3)式を代入することにより,割れたペレットの実効的ャン グ率 E' は次式で表わされる。

最後にこのように導入した v および E'モデルが 照射中の燃料棒のハード P C I 挙 動をどの程度正しく予測するかを調べるため,これらのモデルを実効弾性モデルと して F E A S T に組み込み,このコードで H B W R で実施された直径測定実験の燃料 棒を対象に変形解析を行い,解析結果を直径測定データと比較した。図5.19は, 解析に用いた有限要素モデルである。比較結果を図5.20に示す。図から実効弾性 モデルは照射中の燃料棒のハード P C I 挙動を良く表現していることがわかる。



とペレットの実効ヤング率(E')の関係 (FEASTコードによる解析)



図 5.19 燃料棒変形解析有限要素モデル



20 燃料操変形(リッショさ)の 炉内の実測値と実効弾性モデ ルによる計算値の比較

# 5. 結 言

ハードPCI領域における割れたペレットの実効的な変形モデルを検討した。とこで は、割れたペレットを破片が集まった1個の集合体と仮定し、これに実効的な機械的性 質を与えるという方法を採用した。この機械的性質を見い出すため、中心加熱法による 炉外PCI模擬実験と燃料挙動解析コードによる燃料棒のPCI変形解析を行った。

- (1) 炉外PCI模擬実験では、燃料棒の設計仕様(ギャップや被覆管肉厚)とハード
  PCI挙動(直径増加やリッジ形成)の関係を調べた。その結果、燃料棒の直径増加
  やリッジ高さはギャップや被覆管肉厚の増加とともに減少することがわかった。
- (2) 燃料棒のPCI変形解析ではUO2 ベレットのヤング率,ボアソン比,熱膨張率と 燃料棒のハードPCI挙動との関係を調べた。その結果,ポアソン比(ν)は燃料棒 のリッジ変形に強く関与する物性値であり,特に割れたベレットの実効的なポアソン 比(ν')をν'=0.3 νとするとハードPCIのリッジ変形を良く表現すること,熱膨 張率は燃料棒の直径増加率に影響を与えるが,変形に対する被覆管肉厚の影響を十分 表現できないことがわかった。これに対し,ヤング率は燃料棒の直径増加率および 直径増加に対する被覆管の肉厚効果の両方に強く影響を与える物性値であることが確 認された。
- (3) 炉外実験とPCI変形解析の結果から、割れペレットの実効的な変形モデルとして、 実効ヤング率モデルを導入した。割れたペレットの実効ヤング率E'(Mpa)は初期 ギャップをGo(µm)、被覆管内径をD(mm)とすれば下式で与えられる。

$$E' = 2.1 \cdot E \exp \{ -8.0 \times 1 \ 0^{-2} \ (\frac{G_0}{D}) \}$$

(4) 上記, v'およびE'を取り入れた燃料挙動解析コードは,照射中の燃料棒のハード PCI変形挙動を良く表現した。

# 6. 参考文献

- (1) E. Dumcombe et. al.: CYGRO-3.A computer programme to determine temperature, stress and deformations in oxide fuel rods, WAPD-TM-961 (1970)
- (2) E. Rolstad and S.E. Wennemo, : Status of POSHO-TERMAL Fuel Performance Model: IAEA Specialists Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modeling, Preston,, UK (1982)
- (3) M.P. Bohm: NUREG-1028 (1977)
- (4) K.Ito, M.Ichikawa, T.Nakajima, M.Sogame, T.Okubo and
  T.Saito: A comparison of FEMAXI-III code claculations with irradiation experiments, Res Mechanica 2 (1981)
- (5) D.D. Lanning, F.E. Panisko, C.L. Mohr : "Gapcon-Thermal-3 Verification and Comparison to In-Reactor Data", PNL-2435 NUREG/CR-0218, R1 & R3 (September 1978)
- (6) K.Ito, M.Ishida, and M.Oguma: "FEAST": A Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-mechanical Fuel Rod Behavior, Paper Presented at the Enlarged HPG Meeting Loen, 1978
- (7) M. OGUMA : Cracking and Relocation Behavior of Nuclear Fuel Pellets during Rise to Power; Nucl. Eng. Des., 76, 1 (1983)
- (8) K.Ito, Y.Wakashima and M.Oguma: Pellet compliance model based on out-of-pile simulation, Nucl. Engrg. Des. 56 (1980) 117.
- (9) 藤江,小熊,新保,牧,河原:沸騰水型原子炉(BWR)燃料に対する信頼性向上の研究現状;日立評論,60[2],(1978)
- (10) M. Jacob and K. A. Rees : Trans. Amer. Inst. Chem Engrgs., 37 (1941)

-129-

- (1) A.M. Ross and R.L. Stoute : Heat Transfer Coefficient Between UO<sub>2</sub> and Zircaly-2: CRFD-1075 (June 1962)
- A.D. Appelhans, S.J. Dagdjartsson and R.W. Miller,:
  Cracking and relocation of UO<sub>2</sub> fuel during initial nuclear operation, NUREG/CR-425 (1980).
- <sup>(13)</sup> N. Igata and K. Domoto : J. Nucl. Mater., 45, 317 (1972/ 73)
- MATPRO Version-09: A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior, TREE-NUREG-1005, 1976
- (15 K.O. Villponnen, et al. : IAEA Specialists' Meeting, Riso, (1980)
- M.Ichikawa, K.Yanagisawa and E.Koistad: "Studies on Radial and Axial Deformation of Fuel Rods by Inpile Measurements"; International Atomic Energy Agency Specialists' Meeting on, PELLET-CLADDING INTERACTION IN WATER REACTOR FUEL, (1983)
- (17)小熊,細川:燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル;日本原子力 学会分科会(昭和53年)
- (18) 小熊,他:グラファイトコーティング燃料棒のPCI炉外実験;日本原子力学会年 会(昭和55年)

-130-

# 第6章 ペレットと被覆管相互作用の開始条件

#### 1. 緒 言

燃料挙動解析コードで燃料棒のPCI挙動を解析する場合,ハードPCIによって被 覆管に発生する応力やひずみは,前章で述べた割れたペレットの機械的性質だけでなく,  $(1) \sim (3)$ ハードPCIがどの時点(出力)で発生したかによっても影響を受ける。 したがって, このハードPCI開始出力の正確な予測が燃料挙動モデリングの最も重要な課題の一つ となっている。 🎬 4 章で導入したギャップ閉塞モデルは, 図4.19に示したように出力上 昇に伴いギャップがどのように閉塞してゆくかということを予測するが,ハードPCI は実効的なギャップがある正の値 " G<sub>h</sub>"に減少したとき発生することになるので、こ のギャップ閉塞モデルからどの時点でハードPCIが起こるかを予測することはできない。 本章の研究は、ハードPCI開始点を求めることを目的に行ったものである。ハード PCI開始点は、割れたペレットの破片同志が互いに不整合な噛み合いを生じ、その部 分に多数の空隙を残した状態で破片同志が固着したときであると考えられる。そこで、 ここでは割れたペレット片相互間の摩擦力とせん断力とからペレット片の固着条件を解 析的に求める方法と,燃料棒横断面における空隙率 ( void ratio)の概念を導入しハ ードPCIが発生する臨界空隙率( critical void ratio )をPCI実験データか ら求める実験的方法の2種類の方法について検討を行った。後者の臨界空隙率はハード PCI発生時において, 被覆管横断面の内側の全面積に対する全空隙面積の割合であり,

ハードPCIが発生する実効的残留ギャップGhに対応するものである。

# 2. ハードPC | 開始条件の解析的検討

第4章で述べたソフトPCIは,被覆管と接触したペレット片と接触していないペレ ット片との間ですべりが起こり,被覆管の抗力がペレット全体に伝達されない状態であ る。これに対し,ハードPCIはペレット片相互のすべりが抑制され,剛体のように被 覆管の拘束力をペレット全体が受けるようになった状態と考えられる。以下,ハード PCI開始条件を解析的に検討する。

解析にあたって,まず次のような仮定を置いた。

(1) ハードPCIは、ペレット片相互間の固着によって生じる。

 (2) ペレット片の固着は、ペレット片ーペレット片接触面に生じる摩擦力がUO2のせん (7)
 断力に等しくなったときに発生する。

(3) ペレットは図4.13に示したような,一定の幾何学的パターンで割れる。

2.1 ペレット片ーペレット片接触面に作用する垂直抗力

図 6.1 に、割れたペレットの横断面の幾何学的モデルを示す。図から、被覆管と接接触する一個のペレット片に加わる外力 FpcIと接触面に生じる摩擦力 Fx,垂直 抗力Wとの関係は、次のように表わされる。

 $F_{PCI} = F_1 \cos \theta + F_2 \cos \theta + W_1 \sin \theta + W_2 \sin \theta \quad \dots \quad (6-1)$ 

幾何学的対称性から、 $W_1 = W_2 = W$ ,  $F_1 = F_2 = F_X$ である。そして、接触面の 摩擦係数を $\mu$ とすれば、垂直抗力Wは次式で与えられる。

 $W = F_{PCI} / 2 \left( \mu \cos \theta + \sin \theta \right) \qquad \dots \qquad (6-2)$ 

摩擦係数µは,図6.2のような接触面の凹凸を仮定すると,(6-3)式となる。

 $\mu = \mu_0 + \tan \lambda \qquad (6-3)$ 

但し、 $\mu_0$  は $UO_2 - UO_2$ の摩擦係数である。また、 $tan \lambda$ は表面の凸部を乗り 越えるための荷重成分である。



図 6.1 割れたペレットの横断面(模式図)



図 6.2 ペレット破面の凹凸

2.2 接触面の真の接触面積

一般に,接触している2平面の接触面を微視的に観察すると,真に接触しているのは各々の面に存在する凸部である。ペレット破面の凸部が,全て等しい半径roの半球で構成されていると仮定し,互いに接触する1対の凸部を模式的に示したものが図 6.3 である。



図 **6.3** 接触面の1対の凸部が垂直力 で弾性変形する場合の概念図

図に示すように垂直方向荷重wによって凸部が互いに弾性的に潰れると仮定する。 図から次のような関係が得られる。

とこで, α: 半球の任意の 2 点M, N間の距離

ε: 半球が潰れたときその場所における半径の減少分

Z: M点またはN点と半球接触部との距離

r:2個の半球の接触点における法線とM点またはN点との距離である。

(9) M点またはN点における変位 εは,球ー球接触の弾性論より次式で与えられる。

$$\varepsilon = \frac{(1-\nu^2)}{\pi E} \iint \frac{q}{r} \circ dA \qquad \dots \qquad (6-5)$$

ここで, ν : UO2 ペレットのポアソン比

E : UO2 ペレットのヤング率

- q : 接触面に作用する圧力
- dA:接触面上の微小面積

である。

(6-4), (6-5)式から(6-6)式が得られる。

ただし, a:半球同志の潰れによって形成される接触部の半径

qo: 半球の先端部分の圧力

である。ここで q<sub>0</sub> は, q<sub>0</sub> = 3 w  $/ 2 \pi a^2$ で与えられる。これを (6 - 6)式に (7) 代入し整理すると、接触部の半径 a は次のように表わされる。

このような互いに接触する凸部が接触面に n 個存在 すれば,接触面の真の接触 面積 A は

である。いま、半径 ro の凸部(半球)が接触面上で密に配列しているとすれば、接触面の面積に対する凸部の投影面積の比Xは、簡単な幾何学的計算から $X = \pi / 4$ と近似される。ペレットの半径、高さをそれぞれR、Lとすれば、破面、すなわち接触面に存在する凸部の数nは次式で与えられる。

すなわち,垂直力Wによるペレット片ーペレット片接触面の真の接触面積Aは, (6-8)式に(6-9)式,(6-7)式およびw=W/nを代入することによ って次のように与えられる。

-135-

以上の検討は,接触する凸部は垂直抗力によって弾性的に変形するとの仮定に基 づいている。もし,凸部の変形が塑性変形であれば, (6-10)式は成立しない。 (8)00 すなわち,弾性変形であれば $A \propto W^3$ であるのに対し,塑性変形では $A \propto W$ となる。 しかし,面と面の圧接や摩耗の研究結果によれば,接触面ではまず最初に突出した 少数の凸部が塑性変形によって潰れ,やがて細い多数の凸部によって荷重が支えら れるようになる。そして,このような多点接触下では,凸部の弾性変形でこれらの 0000接触現象を説明できるとされている。 このことから,実際のUO<sub>2</sub> ペレット破面 においても表面の凸部の変形を弾性変形と仮定しても妥当と考えられる。

2.3 ハードPCI開始条件

最初に仮定したように、ハードPCIはペレット片ーペレット片接触面に生じる 摩擦力Fxが、真の接触部分をせん断するのに必要なせん断力Fyを越えたとき発 生するとして、その条件を求める。まず接触面の摩擦力Fxは、図6.1から、

である。せん断力  $F_Y$ は、 $UO_2$ のせん断強度をτとすれば、 $F_Y = A \cdot \tau$ である。 (2) これに、(6-10)式の真の接触面積 Aを、さらに $UO_2$ のポアソン比 $\nu = 0.3$ を代入すれば、 $F_Y$ は次式で与えられる。

図 6.4 に,垂直力WとFx, Fy との関係を示す。この関係から,ハードPCI 開始点(Fx=Fy),およびハードPCI領域(Fx>Fy)の垂直力Wが得ら れる。一方,燃料挙動解析コードを用いれば,ペレット片の接触面に生じる垂 直力Wは容易に計算されるから,Fx  $\geq$  Fy となる出力としてハードPCI開始出 力を求めることができる。この方法は,有限要素法を用いた燃料挙動解析コードの ように,ペレット片ーペレット片接触部の局所的解析ができる場合は有用であるが,

-136-

あらかじめペレットの割れ形態や破面の状態を知っておく必要があるという問題が ある。この意味では、次節に述べる実験的アプローチの方が簡便法としてより容易 にハードPCI開始条件を与えることになる。



# 図 6.4 ハード P C I 開始条件

# 3. ハードPC | 開始条件の実験的検討

本節および次節では,燃料棒横断面における空隙率の概念に基づき,ハードPCIを 実験的に検討した結果について述べる。

炉外PCI模擬実験(第5章)で得られた燃料棒の出力上昇過程における典型的な直 径変化挙動は、図5.10のように、初期ギャップとは無関係に燃料棒の外径がほぼ一定の 値(同図,点線)になるとハードPCIが発生することを示した。これは、被覆管の初 期寸法が全て同一であるから、一定のひずみを生じたときハードPCIが発生したこと を示している。点線での変形を弾性変形と仮定すれば(この仮定は、予備実験で点線の ところまで直径変形させた燃料棒には全く塑性ひずみが観察されなかったことか ら妥当と考えられる)、割れたベレットはその時点で被覆管から等しい拘束力(反力) を受けていたことになる。このことから、割れたベレットにある一定の荷重が加わると、 割れたベレットは見掛け上剛体のようになってハードPCIを起こすと考えられる。言 い換えれば、リロケーションした割れたベレット片群の熱膨張によって被覆管内の空隙 率がある値まで減少したとき、割れたベレットの圧縮性が喪失しハードPCIが開始す ると考えられる。そこで、この割れたベレットの圧縮性が喪失する臨界空隙率を燃料棒 の照射データから実験的に求めた。

# **3.1** HBWR照射燃料棒

解析対象とした燃料棒は,HBWRにおいて照射された全長約600mmの短尺燃 料棒6本(B1~B6)である。それら燃料棒の設計仕様は,燃料棒長さやその他 実験パラメータとなっている特殊な仕様を除けば基本的に,BWR8×8型燃料の (13) それとと同一である。表6.1に燃料棒の主な仕様を示す。 表 6.1 HBWB直径测定照射実験用燃料棒の主な設計仕様

hollow/disk 5.35 B 6 0.3(He) 0.86 10.72 10.47 chamfer hollow 400 75 В В 10.74 B4 Full anneal 12.3 90 10 10.44 210 ВЗ 0.1(He) 10.55 10.10 chamfer 340 110 0.81 B2 10.58 60 B 1 ( mm ) (mm) ( uu ) ( mm ) Filler gas press.(MPa) ( mm ) (%) ( un/ ) Rod Heat Treatment Zr--2 Cladding Outer dia-Fuel length Enrichment Pellet form Initial gap Thickness UO pellet Diameter Density Fuel rod Length Item

-139-
6本の燃料棒は、いずれも10%濃縮UO2ペレット(密度;95%TD)を燃 料棒長さが340~400mmになるように、外径約123mmの再結晶焼鈍ジルカロイ -2被覆管に装填したものであるが、表からわかるように、B1~B3燃料棒はギ ャップが、B4~B6燃料棒はペレットの形状がそれぞれ主要な設計パラメータに なっている。B1~B3燃料棒の場合ペレットの外径を変えることによって、60、 110、210µmの3種類のギャップを設けている。また、B4~B6燃料棒で は、標準ペレットであるチャンファペレットの他にホロー(中空)、ホロー/ディ スク(短尺中空)の2種類のペレットが、各々燃料棒別に装填されている。なお、 燃料棒に充填される He ガスの圧力はB1~B3燃料棒が約1気圧、B4~B6燃 料棒が約3気圧である。これらの燃料棒はいずれも燃料中心温度測定用熱電対(W 3%Re-W25%Re)と燃料棒伸び検出器が取付けられている。

## 3.2 燃料集合体の構造

燃料棒は3本を1組として、HBWRの燃料棒直径測定用計装燃料集合体、2体 に組込まれた。図6.5に直径測定用燃料集合体の代表的構造を示す。燃料集合体に 装備されている直径測定器は,基本的には第5章で述べた炉外PCI模擬実験で使 用した直径測定器と同じ機能と構造のものである。すなわち、円周方向に60°間 隔で梃子式の変位検出子と差動トランスデューサが配置され,これが水圧駆動で燃 料棒に沿って上下に移動し,照射中の燃料棒の直径と軸方向プロファイルデータを 出力する。直径測定精度は土2μmである。燃料集合体の他の計装としては、燃料 棒の出力解析に必要な情報を得るための、タービン流量計、冷却水温度測定用熱電 対,中性子束検出器などがある。中性子検出器は,集合体の径方向および軸方向に 3~4個づつ配置され,燃料棒軸方向の局所的な出力計算が精度よくできるように 考慮されている。この他に燃料集合体には燃料棒の破損を探知する破損検出器や, 出力上昇速度および出力レベルを制御する出力制御機構が設けられていが、これら は本解析と直接関係はない。2体の燃料集合体は相次いでHBWRに装荷され, 照射が行われた。本解析に関係する第1回出力上昇試験の出力条件は,燃料棒の平均 出力上昇速度が2W/cm/min,最高到達出力が約480W/cmである。なお,こ れら燃料棒は1~2年間照射された後、ノールウェー国のシェラー研究所で一連の 照射後試験が実施された。



図 6.5 燃料棒直径測定用照射燃料集合体

の一例(HBWR照射リグ)

### 4. 結果および検討

# 4.1 燃料棒のギャップとハード PCI開始出力

B1~B6燃料棒の第1回出力上昇時における,リッジ高さと直径測定結果を図 6.6~図6.11に示す。これらの結果はいずれも,燃料棒の軸方向中央部約200 mmの区間で測定された直径およびリッジ高さのデータを平均したものである。まず ギャップを実験パラメータにしたB1~B3燃料棒の測定結果をみると,ハード PCI開始出力(図中,矢印)はギャップに強く依存していることがわかる。これらの 結果は図5.10に示した,炉外PCI模擬実験の結果と定性的に良く一致している。

ギャップの最も小さい(Go=60μm)B1 燃料棒では,約100W/cm付近からハー ドPCIを裏付けるリッジが出現し、出力上昇とともにそれが顕著になってくる。 直径測定データは, 直径測定器が稼動直後にドリフト現象を起こしたためソフト PCI領域の変形挙動が不明瞭であるが、リッジ形成出力とほぼ同じ出力(約100 W/cm)から出力に対する直径増加率が増大し、ハードPCI領域に入ったことを 示唆している。 B 2 燃料棒(G 0 = 1 1 0 μ m )の場合は,出力上昇開始直後に直 径測定器が故障したため、低、中出力領域のデータは得られなかった。直径測定器 が機能復帰した約450W/cm(最高出力)では,既に2~4 $\mu$ mのリッジ形成が 認められた。B1燃料棒の,リッジ高さの出力に対する増加率が他の燃料棒のそれ と同じであると仮定し、測定されたリッジ高さから逆にリッジが最初に形成される 出力を推定すると、約410W/cmとなる。しかし、この出力をハードPCI開始 出力とするにはデータ点が1点のみで問題がある。そこで、ハードPCI開始出力 は、410~450W/cmの範囲にあるとするのが妥当と考えられる。ギャップが 最も広い(G<sub>0</sub> = 210 $\mu$ m)のB3燃料棒では最高出力450W/cmまで、リッ ジ変形やジルカロイ被覆管の熱膨張で予測される以上の直径増加は認められなかっ た。次に、ギャップが一定(G<sub>0</sub> = 7 5  $\mu$  m)でペレット形状を実験パラメータと した B 4 ~ B 6 燃料棒では、いずれの燃料棒の場合でもリッジ形成出力はほぼ一定 (約230W/cm)である。このことから、ハードPCI開始点は、ペレットの形 状にはほとんど依存しないことがわかる。なお,B4~B6燃料棒の低,中出力範 囲の直径変形挙動をみると、UO2ペレットの破壊出力である60W/m付近から ハードPCI開始出力に至るまで、ソフトPCIによると思われる緩かな直径増加 現象,すなわち第4章で述べた,ソフトPCI領域がかなり明瞭に観察される。



図 **6.6** 第1回出力上昇時におけるB1燃料棒の リッジおよび直径変形挙動







図6.8 第1回出力上昇時におけるB3燃料棒の変形挙動



図 **6.9** 第1回出力上昇時における B4 燃料棒の リッジおよび直径変形挙動



図 **6.10** 第 1 回出力上昇時における B 5 燃料棒 のリッジおよび 直径変形挙動



図 6.1 1 第 1 回出力上昇時における B 6 燃料棒 のリッジおよび 直径変形挙動

#### 4.2 ハードPCI開始条件

本実験結果および前章の炉外PCI模擬実験結果から、ハードPCIは、割れた ペレットの圧縮性が被覆管の拘束力に対して見掛け上喪失したときに発生すると考 えられる。粒状物質をシリンダーに充塡し一定荷重で緩やかに圧縮してゆくと、充 填物質の空隙率が次第に減少し、最終的にそれがある値に達するとその物質の圧縮性が (16) (17) 失われ,それ以上変形させることができなくなる現象は一般によく知られている。 第4章で述べたように、ペレットの破片をそのような粒体と仮定すれば、ハード PCIは、割れたペレット、すなわち粒体の集合体が出力上昇とともに熱膨張する 結果,被覆管内側の空隙率が減少し,ある臨界値に達したときに発生するとみなす ことができよう。空隙率とは被覆管内側の断面積に対するペレットに占有さ れていない空間面積の比である。いま,ペレット内部に存在する割れ空間が 全てギャップに集まったとしたときの実効ギャップをG,被覆管の内径を  $D_{c}$ とすれば、空隙率  $\beta$ は、  $\beta = 2 G / D_{c} ((4 - 12) d)$ で近似される。一方 (4-12式)のGは、出力の関数として(4-15)式で与えられる。したがっ て, (4-15) 式に B1~B6 燃料棒の 被覆管 内径 Dc とハード PC I 開始出力 Pを代入し,得られたGを(4-12)式に代入すれば,これら燃料棒の臨界空隙 率を求めることができる。このようにして求めた臨界空隙率を表6.2に示す。また, 表6.3は他の類似した燃料棒照射実験データから同様な方法で求めた臨界空隙率で ある。表 6.2, 表 6.3 から, 210 μ m 以上の広ギャップ燃料棒および70μm 以 下の狭ギャップ燃料棒を除けば,ギャップに依らず空隙率が 0.25~0.29%の範 囲でハードPCIが発生することがわかる。ここでは、平均的ギャップを持つ燃料 棒の臨界空隙率として,より低いハードPCI開始出力を与える値の 0.29% を採ることにする。ギャップ210μmのΒ3燃料棒では,最高到達出力450W /cmにおいてもハードPCIが発生しなかったが,これは450W/cmでの空隙率が, 0.63%でハードPCIの臨界空隙率0.29%に達していなかったことから理解でき る。なお,この燃料棒がハードPCIを開始する出力,すなわち空隙率が 0.29%に達する出力はおよそ650W/mと計算される。また,70 µm 以下の狭ギャップ燃料棒では,臨界空隙率は0.29%以下で,かつその値は ギャップが狭くなると更に減少する傾向がみられる。この理由は、ペレット が出力上昇過程で割れても被覆管内の自由空間が少ないので、ペレット片は

大きくリロケーションすることができず,開いたクラックが熱膨張で再び閉じ合 わされるような状態でハードPCIが起こるためと考えられる。ギャップが狭くな ればなる程このような状態になりやすいから,ギャップの減少とともに臨界空隙 率も減少することになる。このような状態は,圧縮される粒体のようにペレット片 同士が不規則に移動し,嚙み合いつつ被覆管内側の空間を埋めてゆくという最初の 仮定からはずれている。したがって,ギャップがペレットジャンプ量に近い(一般 的な軽水炉燃料棒では,50µm程度)狭ギャップ燃料棒については空隙率の概念 を適用することはできない。

Rod No.	Initial gap (µm)	Hard PCI onset power (W/cm)	Effective gap (µm)	Critical void ratio (%)
B <b>4</b>	75	230	12.9	0.25
B5	75	220	13.4	0.26
B.6	75	230	12.9	0.25
B2	110	410~450	13.1	J.25~0.29
B 1	60	100	8.6	0.18
Β3	210	>450	>33	< 0.63

表6.2 ハード PC I 開始時におけるギャップおよび空隙率

Rod No.	Initial gap (µm)	Hard PCI onset power (W⁄cm)	Critical void ratio (%)
C1	63	120	0.20
C 2	69	160	0.22
C 3	69	195	0.25
C 4	75	210	0.27
C 5	75	200	0.28
C 6	100	380	0.26

**表 6.3** ハード P C I 開始時における空隙率

#### 5. 結 言

燃料棒のハード P C I 開始条件を,解析的方法および実験的方法により検討した。 解析的方法では,リロケーションしたペレット片が被覆管から拘束力を受け,隣接す るペレット片との間の摩擦力が,真の接触部のせん断力と等しくなったとき,割れたペ レットは見掛け上剛体のようになりハード P C I が開始されると仮定した。そして,そ の開始条件を解析的に求めた。この方法は,ペレット片相互の局所的応力解析が可能な 燃料挙動解析コードのサブモデルとして適しているが,解析に先立ちペレットの破面に 関する情報を必要とするという問題がある。

実験的方法では、割れたペレットを粒状の破片の集合体とみなし、粒体物質の充填の 場合と同じように、この集合体の圧縮性が被覆管の拘束力に対し見掛け上消失したとき、 ハードPCIが開始されると仮定した。そして、この圧縮性消失は、被覆管断面の全空 間面積と、ペレットが占有していない全空隙面積とから決まる空隙率がある臨界値にな ったとき発生するとして、この臨界空隙率をHBWR照射燃料棒のPCI変形データか ら求めた。その結果、平均的初期ギャップを有する一般的な軽水炉燃料棒の臨界空隙率は、 ほぼ0.29%であることがわかった。リロケーションが初期の段階で制約されるような

-151-

狭ギャップ燃料棒では、割れたペレットの挙動を粒体の充填挙動のようには仮定できない。したがって、ギャップがペレットジャンプ量に近い狭ギャップ燃料棒では、空隙率の概念は適用できない。

## 6. 参考文献

- K. Ito, M. Ichikawa, T. Nakajima, M. Sogame, T. Okubo and T. Saito, A comparison of FEMAXI-III code calculations with irradiation experiments, Res Mechanica 2 (1981) 109.
- (2) D. D. Lanning, F. E. Panisko, C. L. Mohr, "Gapcon-Thermal-3 Verification and Comparison to In-Reactor Data", PNL-2435, NUREG/CR-0218, R1 & R3 (September 1978).
- (3) K. Ito, M. Ishida, and M. Oguma ; "FEAST", A Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermomochanical Fuel Rod Behavior, Paper Presented at the Enlarged HPG Meeting, Loen, 1978.
- (4) M. P. Bohm : NUREG-1028 (1977)
- (5) Entropy Limited : EPRI NP-2291,1 (1982)
- (6) K. Ito et al. : Res Mechanics, 2, p109 (1981)
- (7) G. E. Dieter : Mechanical Metallurgy ; McGraw-Hill Kogakusha Ltd. (1976)
- (8) E. P. Bohm and D. Tabor : The Friction and Lubrication of Solids; Claredon Press (1954)
- (9) S. P. Timoshenko and J. N. Goodier : Theory of Elasticity,
  (McGraw-Hill Kogakusha, 3rd Edition) pp 409-420
- 00 J. A. Archard : J. Appl. Phys. 32, p1420 (1961)
- J. A. Archard : Proc. Roy. Soc. Lond., 243, Series A, p190 (1957)

- MATPRO Version-09 ; A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of Light Water Reactor Fuel Rod Behavior, TREE-NUREG-1005, 1976 4, P179 (1978)
- (3) 藤江,小熊,新保,牧,河原:沸騰水型原子炉(BWR)燃料に対する信頼性向上の研究現状;日立評論,60[2],(1978)
- (14)小熊,細川:燃料棒照射初期のギャップ解析とリロケーションモデル;日本原子力学会分科会,(昭和53年)
- (1984) HP : OECD Holder Reactor Project; (1984)
- (6 K. Chino et al. : Power and Powder Metallurgy 29,
- (7) H. F. Fishmeister et al. : Power Metallury p

# 第7章 結 論

軽水炉燃料のより優れた負荷追従性能と燃焼度の伸長は、今後の原子力発電の経済性向上 のために達成しなければならない重要課題である。一方、燃料破損の主原因はPCI/ SCCであるから、このような燃料の高性能化にはまず燃料棒の高出力変動下における使 用限界をPCIの観点から正確に評価することが必要である。このためには、UO2 ベレットの変形挙動に関する正しい理解が不可欠である。特に燃料棒の最初の出力上昇過 程で起こる"破壊(割れ)"や"リロケーション"などのペレットの変形は、燃料棒の PCI性能に決定的な影響を与えるから、それらの正確な理解が最も重要となる。

本研究は,燃料棒の出力上昇開始から定格出力に至るまでのUO2 ペレットの変形挙動 を解明するとともに,それらをモデル化し燃料挙動解析技術に反映することを目的として 行ったものである。

本研究の内容は(1) UO<sub>2</sub> ペレットの破壊挙動に関するものと,(2) 出力上昇過程における UO<sub>2</sub> ペレットの挙動との二つに大別される。

(1) UO2 ペレットの破壊挙動

BWRは起動時に一定出力レベルまで制御棒引抜きにより出力急昇するから,UO2 ペレットはこの出力上昇過程で熱衝撃的に割れると考えられる。そこで,UO2ペレッ トの破壊(割れ)の問題を取り上げ,熱衝撃破壊とそのような破壊を評価する上で基本 的な物性値である破壊強度とについて検討を行った。

まずUO2 ベレットの熱衝撃破壊と気孔率, 微細組織との関係を理論解析と炉外熱衝 撃実験とから調べた(第2章)。その結果理論解析で導出した, ペレットの気孔率や潜 在クラック(例えば結晶粒界, 気孔など)の大きさと熱衝撃損傷挙動との関係を表わす 理論式が妥当であることを確認した。そして, 出力上昇過程のUO2 ペレットの熱衝撃 損傷を低減するためには, ペレットの気孔率を高く(密度を低く)すればよいこと, ま た気孔率の変更に対し制約がある場合には, 粗大な潜在クラックを除き細かい潜在クラ ックを数多く分散させればよいことなどを見い出した。

-154-

次に、ペレットの破壊強度と気孔率や潜在クラックとの関係を炉外実験により調べた (第3章)。その結果、気孔率、気孔径、結晶粒径のいずれの増加もペレットの破壊強 度を減少させるが、特に気孔率の影響の大きいこと、また一定気孔率のもとではペレッ ト表面に存在する最大気孔が破壊強度を支配する潜在クラックであることなどを見い出 した。そして、UO2ペレットの破壊強度を微細組織のパラメータとして表わす実験式 を導出し、その検証を行った。

一般に, UO2 ペレットの破壊(割れ)はリロケーションやFPガス放出を増大させ る原因となるから,PCI/SCCの観点からはペレットに割れが生じない方が好まし い。しかし、出力上昇時にペレットに発生する熱応力はUО2 ペレットの破壊強度に比 べ数倍から10倍程度高いから,現在の製造法で製作された通常の微細組織をもつUO2 ペレットを用いる限り,割れを完全に防止することはできない。そこで一つの対策は, ペレットの熱衝撃損傷抵抗を増大させ出力上昇時の損傷の程度をできるだけ低減するこ とである。第2章の熱衝撃挙動に関する研究の結果は,BWRで予想される最大熱衝撃 温度差において,気孔率が0.05のペレットは完全に破砕してしまうのに対し,気孔率 0.15のペレットでは破砕が防止できる可能性のあることを示唆している。したがって, UO。ペレットを低密度化することは一つの対策となり得る。しかし、第3章の破壊強 度に関する研究の結果は,気孔率の増加がペレットの破壊強度を大幅に減少させること を示した。これは,気孔率の増加により,低い熱応力,すなわち低出力レベルでペレッ トに割れが発生することを意味している。言い換えれば気孔率の増加はペレットの熱衝 撃損傷抵抗を増加させるものの熱衝撃破壊抵抗を減少させるという結果をもたらす。更 に気孔率の増加はペレットの熱伝導率を減少させるから、ペレット温度の上昇による割 れやFPガス放出の増加を招くことになる。このように単にペレットの気孔率を増大す ることが燃料棒のPCI/SCC性能を向上させることには必ずしもならない点に注意 する必要があろう。したがって,UO2 ペレットの気孔率あるいは潜在クラックなどの 微細組織は,燃料棒の設計仕様と使用条件を考慮した性能評価を行った上で最適化をは からなければならない。

(2) 出力上昇過程におけるUO2ペレットの挙動
 最初の出力上昇におけるUO2ペレットの挙動をハードPCI発生点の前と後に分け、

-155-

それぞれについて挙動解明とモデル化とを行った。最後にハード P C I 開始条件を解析 的方法,実験的方法の2通りの方法から検討した。

ハードPCI開始前のペレットの挙動(第4章)については,まず燃料棒の照射実験 を行い照射中の計装データから間接的にペレットの割れ,リロケーション挙動を検討した。 次いでペレットの割れ解析を行い,出力と割れパターンの関係,割れパターンとリロケ ーションの関係を求めペレットのリロケーション挙動に対し定量的説明を試みた。その 結果,ペレットに発生するクラックの数は出力に対してほぼ直線的に増加すること,リ ロケーションの大きさはクラック数にほぼ比例すること,更に典型的なBWR燃料仕様 と出力条件では,UO2ペレットは約60W/cmの出力レベルで割れ,割れと同時に約 50µmの急激なリロケーション(ペレットジャンプ)を起こし,次いで緩かなリロケ ーション期間を経てハードPCIに至ることがわかった。これらの知見から,ハード PCI開始前のギャップ変化を表わすギャップ閉塞モデルを提案した。

ハードPCI開始後のペレットの挙動(第5章)に関しては,従来のペレット変形モデ ルの多くが,割れたペレットはハードPCIを起こすとその機械的性質は中実ペレット のそれに復帰すると仮定していた。このため,燃料棒のPCI変形予測精度は良いもの ではなかった。ここでは割れたペレットを破片の集合体とみなし,これに固有の機械的 性質を与える"実効弾性モデル"を導入した。そしてこの実効弾性定数を模擬燃料棒を 中心加熱する炉外PCI模擬実験と燃料棒のPCI解析とから決定した。この実効弾性 モデルは,ハードPCI領域の燃料棒の変形(直径やリッジ形状,高さなど)を良く予 測するものであることがわかった。

最後にハードPCIがどのような条件で発生するかを解析的方法と実験的方法のそれ ぞれから導いた(第6章)。解析的方法では,割れたペレット片が被覆管から抗力を受 けた場合,隣接するペレット片との摩擦力が接触面の凸部をせん断するに要する力より 大きくなった時ペレット片同志の固着が起こり,ハードPCIが発生すると仮定してそ の固着条件を導いた。また実験的方法では,被覆管の抗力に対して割れたペレットの圧 縮性がみかけ上消失した時,ハードPCIが開始されると仮定した。そして圧縮性消失 は燃料棒横断面の空隙率がある臨界値に達した時起こるとして、この臨界空隙率を燃料 棒照射実験から求めた。

UO2 ベレットの変形挙動に関するこれらのモデルは,燃料挙動解析コードに採用さ れ,挙動予測技術に貢献してきた。例えば,BWRの一般的な出力運転(PCIOMR) における燃料棒の直径増加,リッジ変形あるいはFPガス放出量などについては,信頼 性の高い予測が可能となっている。しかし,負荷追従運転のような急出力変動下での, FPガス放出量や燃料棒変形などの予測は,まだ信頼性の点で満足できるまでには至っ ていない。この原因の一つは,熱衝撃破壊や熱サイクル破壊など,急出力変動下での UO2 ベレットの破壊挙動に関する知見が不十分で,まだ燃料挙動解析コードに挙動モ デルとして組み入れられるまでに至っていないためである。したがって,今後の問題は 本論文の第2章,第3章で述べたようなUO2 ベレットの破壊挙動に関する研究を進め, 出力変動下でのペレット挙動のより詳しい知見を得ることと,それらの研究成果を如何 に今後の燃料挙動モデリングに取り入れてゆくかということである。

- M. OGUMA : Cracking and Relocation Behavior of Nuclear Fuel Pellets during Rise to Power ; Nucl. Eng. Des., 76, 1 (1983)
- (2) M. OGUMA : Integrity Degradation of UO<sub>2</sub> Pellets Subjected to Thermal Shock ; J. Nucl. Mater. to be published
- (3) M. OGUMA : Microstructure Effects on Fracture Strength
  of UO<sub>2</sub> Fuel Pellets ; J. Nucl. Sci Technol., 19,2 (1982)
- M. OGUMA and T. HOSOKAWA : Modelling of Pellet-Cladding Gap Behavior during Early Power Operation ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR F4-5, (1978)
- (5) S. SHIMADA and M. OGUMA : Analysis of Fuel Relocation using In-pile Data from IFA-211 and IFA-411 ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR 3/6 (1979)
- (6) K. ITO, Y. WAKASHIMA and M. OGUMA : Pellet Compliance
  Model Bassed on Out-of-pile Simulation ; Nucl. Eng. Des.
  56, 1 (1980)
- (7) S. SAKAGAMI and M. OGUMA : Analytical Models for
  Describing Fuel Pellet Mechanical Behavior in Nuclear
  Reactor Fuel Rods ; Nucl. Tech., to be published
- (8) K. ITO, M. ISHIDA and M. OGUMA : "FEAST" a Finite Element Computer Code for Analysis of the Thermo-Mechanical Fuel Rod Behavior ; Enlarged Halden Program Meeting, HPR F5-1, (1978)
- (9) T. KUBO, M. OGUMA and H. FUJIE : External Pressure Creep Behavior of Zircaloy-2 Tube ; Transactions of ANS Topical Meeting, 28 (1978)

-158-

- (0) 久保,小熊,原:ジルカロイー2燃料被覆管の外圧クリープ;日本原子力学会誌,
  23,7(1980)
- (1) H. HIRAI and M. OGUMA : Grain Growth in Gd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-UO<sub>2</sub> Pellets ; Enlarged Halden Program Growp Meeting, 1/3, (1984)
- (2) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of UO Fuel Simulating High Burnup ; J. Nucl. Sci. Technol., 29, 10 (1983)
- (13 K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of (U, Nd) O<sub>2+x</sub> Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500 °C; J. Nucl. Mater., 118,2-3, (1983)
- (4) K. UNE and M. OGUMA : Oxyten Potential of U 0.85<sup>Z</sup>r0.15<sup>O</sup>2+x Solid Solutions at 1500 °C; J. Am. Ceram. Soc., 66, 10 (1983)
- K. UNE and M. OGUMA : Thermodynamic Properties of Nonstoichiometric Urania-Gadolinia Solid Solutions in the Temperature Range 700 - 1100°C; J. Nucl. Mater., 110, 2-3, (1982)
- M6 K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potentials of (U, Gd) O<sub>2±x</sub> Solid Solutions in the Temperature Range 1000 - 1500 °C ; J. Nucl. Mater., 115, 1 (1983)
- (7) K. UNE and M. OGUMA : Oxygen Potential of  $U_{0.96}^{Gd}G_{0.04}^{O}G_{2}$ ( $UO_2$ -3wt%  $Gd_2O_3$ ) Solid Solution ; J. Nucl. Mater. to be published

-159-

本研究を遂行するにあたり,終始御指導,御鞭撻をいただいた日本核燃料開発株式会社 第2研究部,村田寿典部長(現,取締役)に深く感謝致します。

辞

謝

また本論文のまとめに際し,懇篤な御指導と御助言を賜った大阪大学工学部井本正介教 授,三宅正宜教授,山根寿已教授に心よりお礼申し上げます。

本研究の一部は,株式会社日立製作所エネルギー研究所に在動中に行ったものであるが, その際の研究遂行のみならず本論文のまとめに関し,種々の御支援と励ましをいただいた エネルギー研究所谷口薫所長(現,日本核燃料開発株式会社社長),山田周治副所長(現, 所長),土井彰部長に感謝の意を表します。

最後に,第2章から第6章にわたり試料の製作,実験,解析に多大の御協力をいただいた た,日本核燃料開発株式会社研究部の増田宏,細川隆徳,若島喜和,安田隆芳,宇根勝已, 伊東賢一,田辺勇美の各氏に感謝致します。